

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS



**ESTUDIO DE FLUÍDOS MAGNETO-REOLÓGICOS
MEDIANTE TÉCNICAS DE PROPAGACIÓN
ULTRASÓNICAS**

**MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR
PRESENTADA POR**

Jaime Rodríguez López

Bajo la dirección de los doctores
Francisco Montero de Espinosa Freijo
Luis Elvira Segura

Madrid, 2012

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID



FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS

TESIS DOCTORAL

**ESTUDIO DE FLUIDOS MAGNETO-REOLÓGICOS MEDIANTE
TÉCNICAS DE PROPAGACIÓN ULTRASÓNICAS**

JAIME RODRÍGUEZ LÓPEZ

2012

DEPARTAMENTO DE FÍSICA DE MATERIALES

FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS

ESTUDIO DE FLUIDOS MAGNETO-REOLÓGICOS MEDIANTE TÉCNICAS DE PROPAGACIÓN ULTRASÓNICAS

Autor: D. Jaime Rodríguez López
Licenciado en Ciencias Físicas

Director: Dr. D. Francisco Montero de Espinosa Freijo
Doctor en Ciencias Físicas
Dr. D. Luis Elvira Segura
Doctor en Ciencias Físicas

2012

A mis padres, a mi hermano y a Olga.

Agradecimientos.

“Nunca te entregues ni te apartes junto al camino, nunca digas no puedo más y aquí me quedo. La vida es bella, tú verás cómo a pesar de los pesares tendrás amor, tendrás amigos. Por lo demás no hay elección y este mundo tal como es será todo tu patrimonio. Perdóname, no sé decirte nada más, pero tú comprende que yo aún estoy en el camino. Y siempre acuérdate de lo que un día yo escribí pensando en ti como ahora pienso.”

Nunca se me ha dado bien expresarme por medio de la palabra, y por su puesto llegado este momento, no va a ser una excepción. Sólo espero haber podido demostrar en el día a día todo el cariño y agradecimiento que tengo hacia todas las personas que me han ayudado y han hecho posible que de algún u otro modo hoy esté escribiendo estas palabras.

Contra el viento (WarCry).

En primer lugar y de manera especial, querría expresar mi más profundo agradecimiento a mis dos directores de Tesis, el Dr. Francisco Montero de Espinosa Freijo y el Dr. Luis Elvira Segura. Gracias por haberme dado esta oportunidad de poder realizar la tesis en este grupo de investigación. Gracias por compartir conmigo vuestro tiempo, conocimientos, consejos y buenas ideas. Sin vuestra ayuda sin duda alguna esta tesis no habría salido adelante.

También querría agradecer al Profesor D. Weitz y al Dr. A. Shum (Harvard University), al Profesor R. O’Leary (Strathclyde University) y al Profesor G. Bossis (LPMC) la oportunidad de haberme permitido realizar las estancias breves en sus respectivos centros de investigación. Muchas gracias por haberme permitido desarrollar parte de mi labor investigadora en sus grupos y por su hospitalidad.

Querría agradecer la ayuda proporcionada por el Dr. Juan de Vicente (Universidad de Granada), la Dra. Margarita González (CAEND), a la Dra. Pilar Marín y Ana Aragón (IMA), la Dra. Yolanda Castro y la Dra. Alicia Durán (ICV), al Dr. Lucas Pérez y al Dr. José Luis Prieto (ISOM) y a la Dra. Laura Otero (ICTAN). Gracias por su amable y siempre dispuesta ayuda. También querría agradecer la exhaustiva y tan necesaria corrección realizada por parte del filólogo y profesor de Lengua y Literatura Pedro Rodríguez del Castillo.

Igualmente me gustaría agradecer la ayuda de Dña. María Antonia García y Dña. Candelas Redondo por su trabajo en el laboratorio y porque siempre nos miran a los becarios con buenos ojos. También querría agradecer al Profesor Ricardo Tokio su paciencia y saber estar con los becarios, especialmente en UK. Por último agradecer a María, Susana, Leticia, Marisa, Isabel, Carlos y Emilio que siempre nos hayan resuelto eficientemente las cuestiones administrativas.

También me gustaría recordar a los compañeros de cenas y del fútbol de los martes del CETEF (tanto a los que estuvieron como a los que están ahora), así como a todos los compañeros del Grupo de Materia Condensada Blanda (Boston), del CUE (Glasgow) y LPMC (Niza) que han hecho posible que el día a día sea más fácil y agradable.

Vicio (Reincidentes).

Si tuviera que elegir una imagen que representase todo este tiempo, sin duda alguna sería la de mis compañeros. No les cambio por nada en el mundo, gracias a ellos he disfrutado muchísimo del tiempo que hemos compartido y serán el mejor recuerdo que guarde de esta Tesis. Muchas gracias a Yago, Alberto, Carlos, Pablo, Shiva, Pedro, Manu, Carmen, Cris, David K, Santiago, Gildas, David Julio y Sergio. Entré siendo un alumno ejemplar y condescendiente pero espero haber acabado a su altura.

Meet you there (Augustana).

Espero que Melissa y su familia, Sheena, Matt, David, Damiano, Laura...siempre me recuerden. Mi primera estancia en Boston fue muy especial, la más especial de las tres, y fue gracias a ellos.

The cave (Mumford & sons).

FBZ, Tobi, Isa, Esti, Asier y Mire. Fui campeones del mundo con ellos, eso nunca se me olvidará. Se portaron muy bien conmigo y pasamos grandes momentos juntos.

Nuvole Bianche (Ludovico).

Mi gente de Niza: todos los del edificio Fizeau, especialmente Audrey y Guillaume, Monsieur Morini, las Güeras, Gennifer, Dr. Nico, Pascal, Birhan, Pavel y el mexicanito Juan y su adorable familia; los Italianos futbolistas, las Napolitanas Maria Anna y Lisa, Nica el “Chicharito” y demás gente con los que conviví aquellos días. Una experiencia genial. Espero veros pronto.

Science & Faith (The Script).

Los Dipolos. Poco os puedo decir ahora que no os haya dicho, de todos modos, si eso, ya os lo comento por el Whatsapp o por mail! Sabéis quiénes sois: Juglar, Jefe, Su, Trompeta, Vacas sagradas, Ramos, Lau, Profe, Chache y demás cuadrupolos. Y si tenéis dudas, esperad a la lista de invitados de la boda y lo comprobaréis. ¡Gracias por todo!

You'll never walk alone (Gerry and the Pacemakers).

Madrigal, Ilsi Disi y afición. ¡Los equipos de mis amores, los colores de mi corazón! Compañeros en el campo y amigos fuera de él. Gracias a vosotros la “vida puede ser maravillosa”. Los fines de semana se me hacen cortos a vuestro lado y espero que siga así por mucho años!

No sólo respirar (La Fuga).

¡Y qué os voy a decir, si yo acabo de llegar! El otro día, buscando en la basura encontré el manual de los olvidos, y ahí decía que nunca digáis hasta nunca, porque por veros sonreír podría estar p'aquí p'allá siempre en vela montando jaleo entre nuestros sueños de papel. Espero que algún día os acordéis de mi como a veces lo hice yo. Sí, sois vosotros, Silvia, Mickael, Sandra, Pablo, Emma, Anantek, Bea, Dani y Alex. Sois los de siempre, que os veo! También merecen un recuerdo todos aquellos que algún día fueron y ya no son, porque ellos de algún modo también me ayudaron.

Sin miedo (Rosana).

A mis abuelos, porque pese a vivir momentos difíciles siempre miraron hacia adelante. Gracias a ellos sin duda alguna mis padres son como son hoy en día, un espejo al que mirar. Ojalá que viendo ahora a su nieto, pudieran ver un reflejo suyo. Esto también les pertenece. Muchas gracias por vuestro cariño.

The Raiders March (Jhon Willimas).

Querría agradecer al Dr. Juan Pedro Rodríguez López, el primer doctor de la familia y un ejemplo a seguir, su interesante a la par que arriesgada sugerencia de hacer la tesis. Porque sin querer aspirar sin ninguna duda al nivel de mi querido hermano, es un orgullo el poder haber seguido sus pasos en el difícil mundo de la investigación. Si él me demostró que con esfuerzo y dedicación se puede ser el número uno y ser un gran profesor de universidad e investigador, yo he corroborado que siendo un “verbenas” como soy, me tendré que dedicar a otros menesteres. Gracias por todo brother, ¡te quiero!

Defensa de la alegría (por Joan Manuel Serrat) y Here comes the sun (the Beatles).

Gracias Papá y Mamá por todo. Porque gracias a vosotros Juampe y yo ahora hemos podido llegar aquí y ser como somos. Por que como a vosotros os educaron, siempre nos disteis más de lo que podíais. Espero que en algún momento os podamos recompensar con creces. De momento esta tesis espero que sirva como una pequeña muestra de mi gratitud infinita. Os quiero.

Somewhere over the rainbow (por Israel Kamakawiwo'ole).

Olga, aquí tienes tu parrafito, insuficiente para demostrar lo importante que has sido en estos 11 años. Ya sabes que esto se me da fatal, pero muchas gracias por todo, por haberme soportado y ayudado tanto en los malos y buenos momentos, y por ser como eres. Porque todo este tiempo ha sido difícil, pero estoy seguro de que ahora nos tocan grandes momentos por vivir. Porque todos los momentos son mejores si tú estás a mi lado. Te quiero.

Palabras para Julia (Por Paco Ibañez).

Gracias a todos los que en algún momento se hayan cruzado en este difícil pero bonito camino que me ha llevado a realizar esta tesis doctoral. *Como siempre mal y tarde, la tenéis aquí.*

Índice

| | |
|--|------|
| <u>Resumen</u> | v |
| <u>Lista de Figuras</u> | vii |
| <u>Lista de Tablas</u> | xv |
| <u>Lista de Símbolos y acrónimos</u> | xvii |
| | |
| <u>Capítulo 1. Introducción</u> | 1 |
| 1.1. <u>Materiales inteligentes</u> | 1 |
| 1.2. <u>Fluidos magnetorreológico (MR)</u> | 3 |
| 1.2.1. <u>Composición</u> | 4 |
| 1.2.2. <u>Microestructura</u> | 6 |
| 1.2.3. <u>Reología</u> | 11 |
| 1.2.4. <u>Acústica</u> | 13 |
| 1.2.5. <u>Conclusión</u> | 17 |
| 1.3. <u>Objetivos</u> | 17 |
| 1.4. <u>Contenidos</u> | 18 |
| | |
| <u>Capítulo 2. Teoría</u> | 21 |
| 2.1. <u>Maquetismo</u> | 21 |
| 2.1.1. <u>Efecto de un campo magnético sobre un fluido MR</u> | 22 |
| 2.1.1.1. <u>Campo magnético uniforme</u> | 25 |
| 2.1.1.1.1. <u>Interacción dipolo-dipolo</u> | 25 |
| 2.1.1.1.2. <u>Interacción lateral entre una cadena de partículas y una partícula</u> <u>aislada</u> | 27 |
| 2.1.1.2. <u>Campo magnético no uniforme</u> | 27 |
| 2.2. <u>Propagación acústica en fluidos MR</u> | 28 |
| 2.2.1. <u>Propagación acústica en un fluido isótropo y homogéneo</u> | 30 |
| 2.2.2. <u>Propagación acústica en suspensiones de partículas esféricas en un solvente</u> | 31 |
| 2.2.2.1. <u>Modelo de Urick</u> | 34 |

| | |
|---|-----------|
| 2.2.2.2. <u>Modelo de Harker y Temple</u> | 35 |
| 2.2.3. <u>Propagación acústica en una suspensión de fibras. Modelo de Ahuja</u> | 36 |
| 2.2.4. <u>Propagación acústica en un material poroso</u> | 39 |
| 2.2.4.1. <u>Modelo de Biot</u> | 40 |
| 2.2.4.2. <u>Modelo micromecánico bifásico para la velocidad de propagación</u> | 44 |
| 2.2.4.3. <u>Modelo de Reuss y Voigt modificado</u> | 46 |
| 2.3. <u>Estabilidad. Proceso de estabilización</u> | 50 |
| 2.4. <u>Reología de un fluido MR</u> | 51 |
| Capítulo 3. Materiales y métodos | 55 |
| 3.1. <u>Materiales</u> | 56 |
| 3.1.1. <u>MRC</u> | 57 |
| 3.1.2. <u>MRNice</u> | 58 |
| 3.1.3. <u>MRaceite</u> | 58 |
| 3.1.4. <u>MRaraldite</u> | 60 |
| 3.1.5. <u>MRaraldite sólido</u> | 61 |
| 3.2. <u>Técnicas experimentales</u> | 64 |
| 3.2.1. <u>Montaje experimental acústico</u> | 64 |
| 3.2.1.1. <u>Célula de medida</u> | 64 |
| 3.2.1.2. <u>Cálculos</u> | 67 |
| 3.2.1.2.1. <u>Medidas de velocidad de propagación y tiempo de vuelo</u> | 67 |
| 3.2.1.2.2. <u>Calibración de la célula de medida a 30°C</u> | 70 |
| 3.2.1.2.3. <u>Correcciones por la presión de los imanes</u> | 72 |
| 3.2.1.2.4. <u>Medidas de atenuación</u> | 73 |
| 3.2.1.2.5. <u>Incertidumbre</u> | 78 |
| 3.2.2. <u>Montaje experimental magnético. Creación de campos magnéticos</u> | 82 |
| 3.2.2.1. <u>Electroimán</u> | 83 |
| 3.2.2.2. <u>Bobina</u> | 86 |
| 3.2.2.3. <u>Imanes permanentes</u> | 87 |

| | |
|--|-----------|
| 3.2.3. <u>Montaje experimental medida efecto de la temperatura</u> | 89 |
| 3.2.3.1. <u>Proceso de cálculo</u> | 91 |
| 3.2.4. <u>Montaje experimental óptico</u> | 94 |
| 3.2.5. <u>Montaje experimental reológico</u> | 95 |
| Capítulo 4. Caracterización mecánica de los fluidos MR | 99 |
| 4.1. <u>Efecto de la fracción de volumen de partículas</u> | 100 |
| 4.1.1. <u>Ausencia de campo magnético aplicado</u> | 101 |
| 4.1.1.1. <u>Resultados experimentales</u> | 101 |
| 4.1.1.2. <u>Microestructura</u> | 104 |
| 4.1.1.3. <u>Modelos teóricos</u> | 105 |
| 4.1.2. <u>Campo magnético aplicado</u> | 110 |
| 4.1.2.1. <u>Resultados experimentales</u> | 110 |
| 4.1.2.2. <u>Microestructura</u> | 115 |
| 4.1.2.3. <u>Modelos teóricos</u> | 121 |
| 4.2. <u>Estabilidad y efecto de la temperatura</u> | 133 |
| 4.2.1. <u>Proceso de sedimentación</u> | 133 |
| 4.2.2. <u>Efecto de la Temperatura</u> | 140 |
| 4.3. <u>Efecto de la intensidad y orientación del campo magnético aplicado</u> | 145 |
| 4.3.1. <u>Efecto de intensidad de campo magnético</u> | 145 |
| 4.3.2. <u>Histéresis</u> | 149 |
| 4.3.3. <u>Anisotropía</u> | 153 |
| 4.4. <u>Caracterización reológica por medio de ultrasonidos</u> | 161 |
| 4.4.1. <u>Ensayo 1, fracción de volumen baja</u> | 166 |
| 4.4.1.1. <u>Resultados reológicos</u> | 167 |
| 4.4.1.2. <u>Resultados ópticos</u> | 168 |
| 4.4.1.3. <u>Resultados acústicos</u> | 171 |
| 4.4.1.4. <u>Conclusiones</u> | 172 |
| 4.4.2. <u>Ensayo 2, fracción de volumen alta</u> | 174 |

| | |
|--|------------|
| 4.4.2.1. <u>Resultados reológicos</u> | 174 |
| 4.4.2.2. <u>Resultados acústicos</u> | 177 |
| 4.4.2.3. <u>Conclusiones</u> | 178 |
| <u>Capítulo 5. Conclusiones y líneas de trabajo futuras</u> | 181 |
| 5.1. <u>Conclusiones</u> | 181 |
| 5.2. <u>Líneas de trabajo futuras</u> | 187 |
| <u>Bibliografía</u> | 189 |

Resumen

Los fluidos magneto-reológicos (MR) son medios de gran interés teórico y práctico, ya que presentan la característica de que, sin más que aplicar un campo magnético externo, el sistema evoluciona desde un estado fluido a otro estado en el que muestra una estructura más ordenada. Esta transición viene acompañada, consecuentemente, de un cambio importante en las propiedades del medio. Este cambio en el orden del material está asociado a las interacciones existentes entre las partículas que forman la suspensión y el campo externo aplicado, pasando de un sistema con una distribución homogénea e isotrópica de partículas, a un medio en el cual su microestructura presenta un cierto orden, habiendo una dirección privilegiada que coincide con la dirección del campo magnético aplicado.

Este tipo de materiales fueron desarrollados en la década de los 50. Inicialmente la investigación sobre estos materiales no fue muy intensa debido a la dificultad de generar campos magnéticos apropiados; no obstante, una vez superada esta problemática, el interés se volcó en desarrollar fluidos cuyas propiedades reológicas cambiaran de forma drástica. También se prestó atención a la mejora de aspectos como la prevención de la sedimentación, la facilidad de redispersión de las partículas o el rango de temperaturas de trabajo.

El mayor interés en la investigación sobre estos materiales se ha centrado en la síntesis de los mismos y, particularmente, en el desarrollo de aquellos que produjeran grandes cambios de viscosidad y del esfuerzo umbral dando lugar a aplicaciones comerciales como, por ejemplo, sistemas de amortiguación en automóviles de lujo. Para otras aplicaciones su desarrollo ha sido aún prácticamente nulo.

En esta Tesis, se presenta la caracterización de este tipo de fluidos por medio de técnicas ultrasónicas ya que previamente, la respuesta en velocidad de propagación y en atenuación de ondas elásticas a frecuencia ultrasónica frente a la variación de diferentes factores, como pueden ser la intensidad y dirección del campo magnético, la fracción de volumen y la temperatura, no había sido prácticamente estudiada, como demuestra el escaso número de trabajos publicados relacionados con esta temática.

Haciendo uso de las variaciones de los parámetros acústicos se quiere también profundizar en el conocimiento de aspectos genéricos de estos fluidos como puede ser la evolución de la microestructura, la monitorización del proceso de sedimentación, la aparición de fenómenos de histéresis o el estudio del proceso de ruptura de la microestructura.

También se presenta una revisión bibliográfica de los posibles modelos de propagación acústica que podrían ser utilizados para el análisis de estos fluidos de acuerdo a la microestructura que muestran. Esta microestructura, dependiente de parámetros como la fracción de volumen de partículas y el campo magnético aplicado, ha sido monitorizada mediante fotografía para determinadas condiciones en este trabajo.

Las principales contribuciones originales de esta Tesis podrían quedar resumidas en cuatro grandes ideas:

Es la primera vez que se estudian experimentalmente las variaciones de la atenuación en los fluidos MR debido a factores como el efecto de la fracción de volumen, la temperatura, la sedimentación, la intensidad de campo y la anisotropía.

Es la primera vez que se estudian las propiedades acústicas de los fluidos MR en función de un amplio rango de la fracción de volumen de partículas (0.01 a 0.35), relacionando dicho estudio con la microestructura.

Es la primera vez que se presentan modelos de propagación acústica en los fluidos MR en función de la microestructura observada, la fracción de volumen y la aplicación o no de campos magnéticos, para explicar los resultados experimentales obtenidos.

Es la primera vez que se utiliza una técnica ultrasónica como complemento a las técnicas reológicas para obtener un mejor conocimiento sobre el proceso de ruptura de la microestructura de los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético y un esfuerzo de cizalla.

Esta Tesis constituye una base necesaria para el desarrollo de una investigación profunda sobre las propiedades acústicas en estos fluidos MR y los modelos de propagación en los

mismos. Este primer paso es necesario para poder desarrollar aplicaciones de diferente índole, ya sea monitorizando en línea variaciones de sus propiedades elásticas en aplicaciones ya existentes o ya sea desarrollando otras nuevas en las que uno de los subsistemas sea un fluido MR, pues presentan la gran ventaja de ser medios adaptativos, esto es, medios cuyas propiedades pueden ser controladas sin más que variar el campo magnético aplicado.

Lista de figuras

[Figura 1.1](#) Posibles microestructuras que aparecen en fluidos MR dependiendo de la fracción de volumen, ϕ , y la relación entre la energía magnética y la térmica, λ' . El área roja indica aproximadamente en que región nos encontramos en esta tesis.

[Figura 2.1](#). Esquema de las partículas de hierro (gris) suspendidas en un solvente (amarillo). Al no haber campo magnético aplicado y ser partículas de tamaño micrométrico, dentro de cada partícula se pueden observar dominios, cada uno de los cuales presenta una determinada orientación de la imanación.

[Figura 2.2](#). Al aplicar el campo magnético (flecha roja), los dominios de las partículas se orientan dando lugar a un monodominio cuya imanación, al estar en un fluido, está orientada también en la dirección del campo magnético. En este esquema, se supone que el campo es uniforme y no se tiene en cuenta la interacción entre partículas, de ahí que no se muestre una organización en cadenas.

[Figura 2.3](#). Esquema en el que se representa la presencia de dos dipolos (partículas) representadas por dos esferas grises, separados una distancia r , bajo la aplicación de un campo uniforme y unidireccional H_0 .

[Figura 2.4](#). Esquema de ondas longitudinales y transversales que se propagan en un medio.

[Figura 2.5](#). Modelo de Reuss y Voigt. Cada rectángulo de un color diferente indica una fase, mientras que las flechas negras son el esfuerzo uniforme aplicado.

[Figura 2.6](#). En la parte superior, (a), se representa el fluido MR como una suspensión. En la parte de abajo, (b), se aplica un campo magnético en la dirección de las flechas rojas, que en nuestros ensayos coincide con la dirección de la propagación acústica, provocando que las estructuras orientadas en la dirección del campo se encuentren en paralelo con el resto del sistema.

[Figura 2.7](#). Curvas de flujo en las que se muestra la aplicación de un esfuerzo, τ , y la respuesta en velocidad de deformación, $\dot{\gamma}$, para dos fluidos con propiedades reológicas diferentes. τ_y es el esfuerzo umbral. A la izquierda se representa un fluido newtoniano y a la derecha un plástico de Bingham.

[Figura 3.1](#). Fotografía de la celda de medida.

[Figura 3.2](#). En la parte superior izquierda se muestra un esquema del montaje experimental. 1. Generador de funciones, 2. Celda de medida, 3. Osciloscopio digital, 4. Ordenador, 5. Control térmico, 6. Fuentes de campo magnético, 7. Cámara isotérmica de dimensiones 300x400x600, 8. Piezocerámicas. En la parte superior derecha se muestra una imagen global del montaje. En la parte inferior izquierda el detalle del generador de funciones, osciloscopio y fuentes de tensión. En la parte inferior derecha un detalle del interior de la cámara isotérmica.

[Figura 3.3](#). Esquema donde se muestra cómo a partir de la señal temporal se obtiene el espectro de fases y la amplitud de la señal en el dominio de la frecuencia. Como se verá posteriormente, la amplitud

estará relacionada con la atenuación y la fase con el tiempo de vuelo y por lo tanto con la velocidad de propagación.

[Figura 3.4.](#) En esta gráfica se muestra el ajuste de la variación de tiempo de vuelo frente a la fracción molar en disoluciones de agua y etanol. Los puntos negros son los puntos experimentales y la línea roja el resultado del ajuste.

[Figura 3.5.](#) Montaje experimental para medir la atenuación absoluta. El transductor, (1), está en contacto con una línea de retardo, (2), que a su vez está en contacto con el recipiente que contiene el fluido que se quiera estudiar, (3).

[Figura 3.6.](#) Esquema de modelo de capas para nuestra célula de medidas. Los medios (1) son las cerámicas, los medios (2) son las paredes del metacrilato, y el medio (3) el fluido a estudio. “ t ”, “ x ” y “ d ” son los espesores de las capas, y los términos “ T_{ij} ” son los coeficientes de transmisión entre los medios “ i ” y “ j ”. La señal azul es la señal incidente, mientras que la roja es la señal medida a la salida de la célula de medida.

[Figura 3.7.](#) Electroimán.

[Figura 3.8.](#) Esquema de la célula de medida donde se indican cuáles son las direcciones de los campos aplicados. La flecha blanca indica la dirección de propagación de los ultrasonidos. Las flechas rojas (B) indican la dirección del campo magnético aplicado en la configuración paralela, cuando los campos acústicos y magnéticos son paralelos. Las flechas negras (A) indican la dirección del campo magnético en la configuración perpendicular, cuando el campo magnético es normal al acústico.

[Figura 3.9.](#) Campo magnético obtenido con el electroimán cuando se le aplica un voltaje en continua. Las líneas magentas representan el campo en la configuración paralela cuando la distancia entre núcleos es de 10 mm, mientras que las líneas negras representan el campo en la configuración perpendicular cuando la distancia entre núcleos magnéticos es de 35 mm.

[Figura 3.10.](#) Bobina utilizada para generar los campos magnéticos durante el ensayo reológico.

[Figura 3.11.](#) Vista frontal y lateral de los imanes utilizados en esta tesis.

[Figura 3.12.](#) Variación de la temperatura de la muestra con el tiempo cuando se produce un proceso de enfriamiento.

[Figura 3.13.](#) Variación del tiempo de vuelo teórico, Δt_{nv} , y medido experimentalmente, Δt_{sw} , con y sin imán, en función de la temperatura.

[Figura 3.14.](#) Microscopio Nikon Eclipse 50i y la cámara digital Nikon DS-Fi1.

[Figura 3.15.](#) Objetivo de x4 aumentos acoplado a una cámara digital (Pulnix TM 6CN).

[Figura 3.16.](#) (a) Sistema experimental con los tres montajes, reológico, óptico y acústico acoplados. (b) Detalle del reómetro con la bobina y el sistema de refrigeración.

[Figura 3.17](#). Vista de las placas superior e inferior del reómetro. En la imagen (a), se muestra la placa superior o también denominada geometría. Es la placa que gira. En la imagen (b), se aprecia la placa inferior fija del reómetro. Se ve que en este caso es transparente y tiene acoplado un transductor y un objetivo.

[Figura 4.1](#). Cambio de la velocidad de propagación del sonido, Δc_0^ϕ , dependiente de la fracción de volumen cuando es comparado con el solvente que forma el fluido MR. Los puntos negros corresponden al fluido MRaraldite, mientras que los puntos rojos corresponden al fluido MRaceite.

[Figura 4.2](#). Variación de la atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$, en función de la fracción de volumen respecto a la atenuación cuando no hay partículas de hierro. Los puntos negros corresponden a los diferentes fluidos MRaraldite, mientras que los puntos rojos corresponden con las diferentes suspensiones MRaceite.

[Figura 4.3](#). Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando no hay campo magnético aplicado. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala es la misma $100\mu m$.

[Figura 4.4](#). Variación de la velocidad de propagación experimental (puntos) y la predicción de los modelos teóricos (líneas) para el MRaraldite (figura superior) y MRaceite (figura inferior).

[Figura 4.5](#). Variación de la atenuación experimental (puntos) y la predicción de los modelos teóricos (líneas) para el MRaraldite (figura superior) y MRaceite (figura inferior) considerando que la viscosidad de los solventes es de aproximadamente 1 Pas.

[Figura 4.6](#). Variación de la velocidad de propagación dependiente de la fracción de volumen cuando hay campo magnético aplicado paralelo al campo acústico y cuya intensidad son 212 mT, respecto a la velocidad cuando no hay campo aplicado. Los puntos negros corresponden al MRaraldite, mientras que los puntos rojos corresponden al MRaceite.

[Figura 4.7](#). Variación de atenuación al aplicar un campo magnético paralelo al campo acústico con una intensidad de 212 mT respecto a la atenuación cuando no hay campo magnético aplicado. Los puntos negros corresponden a las diferentes suspensiones MRaraldite, mientras que los rojos corresponden a las diferentes suspensiones MRaceite.

[Figura 4.8](#). Esquema de las dos posiciones diferentes de observación. El (1) es la vista perpendicular a las líneas de campo magnético (observación según el eje y), mientras que el (2) corresponde a la observación paralela a las líneas de campo (según el eje x).

[Figura 4.9](#). Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando hay campo magnético aplicado desde el punto de observación (1), según el eje y. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala blanca equivale a $100\mu m$.

[Figura 4.10.](#) Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando hay campo magnético aplicado desde el punto de observación (2), observación según el *eje x*. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala blanca corresponde a $100\mu\text{m}$.

[Figura 4.11.](#) La línea azul muestra la predicción del modelo de Biot para la velocidad absoluta de los fluidos MRaraldite (arriba) y MRaceite (abajo) cuando se aplica un campo magnético paralelo a la propagación ultrasónica. Los puntos discretos son los resultados experimentales de la velocidad de propagación para cada fluido.

[Figura 4.12.](#) Predicción teórica de la velocidad absoluta según el modelo de Biot para huesos que no son compactos sino que presentan una apariencia de material reticulado o esponjiforme (Williams, 1992). La línea azul representa el comportamiento cuando se considera que el material está consolidado, la línea negra cuando ese mismo material no está consolidado y la línea roja representa el modelo de Urick.

[Figura 4.13.](#) En azul se muestra la predicción teórica del modelo de compresibilidades del cambio de velocidad de propagación, para el MRaraldite (arriba) y MRaceite (abajo), al comparar la velocidad de propagación cuando un campo magnético de intensidad de 212mT es aplicado y cuando no lo es. En negro y en rojo, se muestran los resultados experimentales como ajuste de los puntos experimentales discretos obtenidos.

[Figura 4.14.](#) Estudio de la estabilidad. Variaciones de velocidad de propagación de los diferentes fluidos a estudio en función del tiempo.

[Figura 4.15.](#) Estudio de la estabilidad. Variaciones de la atenuación del sonido de los diferentes fluidos de estudio en función del tiempo.

[Figura 4.16.](#) Proceso de sedimentación seguido por medio de fotografías para el MRaceite al 9% durante 96 horas. Se puede apreciar cómo en la parte superior, con el paso del tiempo la concentración va disminuyendo, mientras en la parte inferior, la concentración de partículas aumenta.

[Figura 4.17.](#) Imagen de la célula de medida una vez que las partículas han sedimentado en un fluido MR genérico. La parte blanca central es la cerámica. La línea negra discontinua indica el nivel de fluido MR al inicio del ensayo, la línea roja el nivel de fluido MR pasados varios días. Las líneas amarillas delimitan el área de medida por la cerámica. Como se ve, la cerámica está situada de manera asimétrica, estando más cerca de la zona inferior. Por esta razón, el proceso de sedimentación implica un aumento de la concentración de partículas con el paso del tiempo.

[Figura 4.18.](#) Velocidad de propagación del sonido en función de la temperatura para MRaraldite al 0% (línea verde), para MRaraldite al 25% sin campo aplicado (línea azul) y para el MRaraldite al 25% con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea negra).

[Figura 4.19.](#) Velocidad de propagación del sonido en función de la temperatura para MRC sin campo aplicado (línea naranja) y para el MRC bajo la aplicación de un campo magnético de una intensidad de 212 mT paralelo al campo acústico (línea morada).

[Figura 4.20.](#) Atenuación del sonido en función de la temperatura para agua (línea roja), MRaraldite al 0% (línea verde), MRaraldite al 25% sin campo aplicado (línea azul), MRaraldite al 25% con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea negra), MRC sin campo aplicado (línea naranja), MRC con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea morada).

[Figura 4.21.](#) Fotografías de MRaraldite al 0.01 sólido (parte superior) y MRaraldite al 0.09 sólido (parte inferior). Las imágenes de izquierda a derecha corresponden a un campo de 20mT, 100mT y 212mT respectivamente. La escala blanca representa $100\mu m$.

[Figura 4.22.](#) Detalle de la fotografía del MRaraldite al 0.01 solidificado bajo la influencia de un campo magnético con una intensidad de 20 mT. Se pueden apreciar fibras de diferentes tamaños suspendidas en el material. Estas fotografías están tomadas en la parte más superficial de la muestra, mientras que las fotografías de la figura 4.21, están tomadas en regiones más centrales del volumen.

[Figura 4.23](#) Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros), MRaceite al 9% (puntos rojos) y MRC (puntos morados).

[Figura 4.24.](#) Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros), MRaceite al 9% (puntos rojos) y MRC (puntos morados).

[Figura 4.25.](#) Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada, señalada por las flechas.

[Figura 4.26.](#) Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaceite al 9% (puntos rojos). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

[Figura 4.27.](#) Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRC (puntos morados). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

[Figura 4.28.](#) Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

[Figura 4.29.](#) Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaceite al 9% (puntos rojos). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada.

[Figura 4.30.](#) Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRC (puntos morados). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada.

[Figura 4.31.](#) Cambios de velocidad producidos en el MRC al aplicar un campo magnético paralelo de 212 mT por medio de un electroimán (rojo) y de imanes permanentes (amarillo), y un campo magnético perpendicular de 63 mT con un electroimán (verde) e imanes permanentes (azul), respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado.

[Figura 4.32.](#) Cambios de atenuación producidos en el MRC al aplicar un campo magnético paralelo de 212 mT por medio de un electroimán (rojo) y de imanes permanentes (amarillo), y un campo magnético perpendicular de 63 mT con un electroimán (verde) e imanes permanentes (azul).

[Figura 4.33.](#) Cambio de velocidad producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en paralelo.

[Figura 4.34.](#) Cambio de atenuación producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en paralelo.

[Figura 4.35.](#) Cambio de velocidad producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en perpendicular.

[Figura 4.36.](#) Cambio de atenuación producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en perpendicular.

[Figura 4.37.](#) . Esquema del reómetro. Las partes azules son las placas del reómetro. La parte inferior es fija y la superior, denominada geometría, es la que ejerce la cizalla rotando.

[Figura 4.38.](#) Proceso de adquisición completo de los ensayos. Se representan las variaciones de tiempo de vuelo frente a los puntos de adquisición (el tiempo de adquisición entre puntos es de 3 segundos). En el ensayo correspondiente a los puntos negros nunca se aplica un campo magnético. En el caso del ensayo correspondiente a los puntos azules el campo magnético está aplicado desde la región III a la V, ambas incluidas.

[Figura 4.39.](#) Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble logarítmica para el *ensayo 1*. Esta representación nos permite obtener el esfuerzo umbral estático.

[Figura 4.40.](#) Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble lineal para el *ensayo 1*.

[Figura 4.41.](#) Imágenes obtenidas durante el *ensayo 1*. La secuencia temporal de las imágenes va de izquierda a derecha y de arriba abajo. A y B han sido tomadas previamente al ensayo y L una vez que este fue acabado. Las imágenes correspondientes al ensayo reológico van de la C a la K.

[Figura 4.42.](#) Variaciones del tiempo de vuelo en función del esfuerzo de cizalla aplicado correspondiente al *ensayo 1*. El recuadro interior es una ampliación de la figura pero centrado en los primeros 90 Pa.

[Figura 4.43.](#) Velocidad de propagación en función de la anchura de la fibra para las fracciones de volumen de 1% y 3% de los fluidos MRaceite y MRaraldite. Se ha variado la viscosidad para mostrar que el comportamiento es el mismo.

[Figura 4.44.](#) Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble logarítmica para el *ensayo 2*. Los puntos negros representan los resultados para el ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT, mientras que los puntos morados representan el ensayo cuando no hay campo magnético aplicado.

[Figura 4.45.](#) Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala lineal para el *ensayo 2*. Los puntos negros representan los resultados para el ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT, mientras que los puntos morados representan el ensayo cuando no hay campo magnético aplicado.

[Figura 4.46.](#) Variación del tiempo de vuelo en función del esfuerzo de cizalla aplicado para el *ensayo 2*. La figura *a* corresponde al ensayo en el que no hay campo magnético aplicado. La figura *b* corresponde al ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT de intensidad.

Lista de tablas

[Tabla 3. 1.](#) Propiedades de los fluidos magnetorreológicos utilizados en esta tesis.

[Tabla 4.1.](#) Velocidades, c_0^ϕ (m/s) y atenuaciones, α_0^ϕ (dB/mm) absolutas de los fluidos MRaraldite para varias fracciones de volumen cuando no hay campo magnético aplicado. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_0^ϕ en (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$ en (dB/mm), de dichos fluidos comparados con las propiedades acústicas del solvente (fracción de volumen 0%). e es el error y ρ (kg/m³) la densidad. El subíndice 0 indica que no hay campo aplicado.

[Tabla 4.2.](#) Velocidades, c_0^ϕ (m/s) y atenuaciones, α_0^ϕ (dB/mm) absolutas de los fluidos MRaceite para varias fracciones de volumen cuando no hay campo magnético aplicado. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_0^ϕ en (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$ en (dB/mm), de dichos fluidos comparados con las propiedades acústicas del solvente (fracción de volumen 0%). e es el error y ρ (kg/m³) la densidad. El subíndice 0 indica que no hay campo aplicado.

[Tabla 4.3.](#) Velocidades, c_B^ϕ (m/s) y atenuaciones absolutas, α_B^ϕ (dB/mm) de los fluidos MRaraldite para varias fracciones de volumen bajo la acción de un campo magnético. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_B^ϕ (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi$ (dB/mm), de dichos fluidos respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado. El subíndice B indica que se ha aplicado un campo magnético.

[Tabla 4.4.](#) Velocidades, c_B^ϕ (m/s) y atenuaciones absolutas, α_B^ϕ (dB/mm) de los fluidos MRaceite para varias fracciones de volumen bajo la acción de un campo magnético. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_B^ϕ (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi$ (dB/mm), de dichos fluidos respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado. El subíndice B indica que se ha aplicado un campo magnético.

[Tabla 4.5.](#) Predicción de las dimensiones de las fibras formadas, a y b , la relación de aspecto, a/b , y el cambio de atenuación con relación a la del solvente, $\Delta \alpha_{Ah}$, obtenido mediante el modelo de Ahuja para el MRaraldite y MRaceite. Los valores fijados se resaltarán en negrita mientras que los obtenidos por el ajuste permanecen con tipo de letra normal.

[Tabla 4.6.](#) Resultados experimentales, Δc_B^ϕ (m/s), y teóricos, $\Delta c_{B\text{mod}}^\phi$ (m/s), para el MRaceite y MRaraldite del cambio en la velocidad de propagación al comparar dicha magnitud bajo la acción de un campo aplicado con el valor obtenido cuando no hay campo magnético aplicado para distintas fracciones de volumen de partículas. La relación de aspecto corresponde a las estructuras en forma de fibras de hierro generadas por el campo magnético aplicado obtenidas mediante el modelo micromecánico. En negrita se presentan los resultados obtenidos por el modelo.

[Tabla 4.7](#). Valores absolutos de la velocidad de propagación y atenuación del sonido para los fluidos estudiados para las orientaciones paralelas y perpendiculares del campo magnético respecto al campo acústico.

Lista de símbolos y acrónimos

| Símbolo | Descripción | Unidades |
|-----------------------|---|--------------------|
| α | Atenuación del sonido. | (dB/mm) |
| α_0^ϕ | Atenuación del sonido cuando no hay un campo magnético aplicado (suspensión) para una fracción de volumen dada. | (dB/mm) |
| α_B^ϕ | Atenuación del sonido cuando sí hay un campo magnético aplicado para una fracción de volumen dada. | (dB/mm) |
| β | Porosidad. | (-) |
| γ | Deformación. | (-) |
| $\dot{\gamma}$ | Velocidad de deformación. | (s ⁻¹) |
| Γ | Parámetro modelo de Ahuja. | (-) |
| δ | Longitud de penetración viscosa. | (m) |
| $\Delta\alpha$ | Variación de la atenuación. | (dB/mm) |
| $\Delta\alpha_0^\phi$ | Variación de la atenuación en función de la fracción de volumen cuando no hay campo magnético aplicado respecto a la atenuación del solvente. $\Delta\alpha_0^\phi = \alpha_0^\phi - \alpha_0^{\phi=0}$. | (dB/mm) |
| $\Delta\alpha_B^\phi$ | Variación de la atenuación para una fracción de volumen cuando sí hay campo magnético aplicado respecto a la atenuación cuando no lo hay. $\Delta\alpha_B^\phi = \alpha_B^\phi - \alpha_{B=0}^\phi$. | (dB/mm) |
| $\Delta\alpha_{Ah}$ | Variación de la atenuación calculada mediante el modelo de Ahuja respecto a la atenuación del solvente. $\Delta\alpha_{Ah} = \alpha_B^\phi - \alpha_0^{\phi=0}$. | (dB/mm) |
| Δc | Variación de la velocidad de propagación del sonido. | (m/s) |
| Δc_0^ϕ | Variación de la velocidad de propagación en función de la fracción de volumen cuando no hay campo magnético aplicado respecto a la atenuación del solvente. $\Delta c_0^\phi = c_0^\phi - c_0^{\phi=0}$. | (m/s) |
| Δc_B^ϕ | Variación de la velocidad de propagación para una fracción de volumen cuando sí hay campo magnético aplicado respecto a la atenuación cuando no lo hay. $\Delta c_B^\phi = c_B^\phi - c_{B=0}^\phi$. | (m/s) |
| Δt | TOF, variación del tiempo de vuelo. Desfase temporal entre dos señales. | (s) |
| Δt^* | Variación del tiempo de vuelo debido a la presión ejercida por los imanes. | (s) |

| | | |
|-----------------|---|------------------------|
| Δt^s | Variación del tiempo de vuelo sin tener en cuenta la corrección por los imanes | (s) |
| Δt_c | Variación del tiempo de vuelo que se produce por variaciones de temperatura en el sistema sin tener en cuenta las variaciones por dilatación. | (s) |
| Δt_l | Variación del tiempo de vuelo debido a las dilataciones en las paredes de la celda de medida por efecto de la variación de la temperatura. | (s) |
| Δt_s | Variación del tiempo de vuelo medido experimentalmente por variaciones de la temperatura. | (s) |
| η | Viscosidad dinámica. | (Pa.s) |
| η_{eff} | Viscosidad dinámica efectiva. | (Pa.s) |
| η^v | Viscosidad de volumen. | (Pa.s) |
| θ | Ángulo formado entre el campo magnético aplicado y el vector posición entre dos partículas o dipolos. | (°) |
| κ | Compresibilidad adiabática. | (Pa ⁻¹) |
| κ_{eff} | Compresibilidad adiabática efectiva de un medio compuesto. | (Pa ⁻¹) |
| κ_f | Compresibilidad adiabática de un fluido. | (Pa ⁻¹) |
| κ_r | Compresibilidad adiabática según Reuss. | (Pa ⁻¹) |
| κ_s | Compresibilidad adiabática de un sólido. | (Pa ⁻¹) |
| κ_{sf}^* | Compresibilidad adiabática de las partículas sólidas que no están alineadas con el campo magnético aplicado. | (Pa ⁻¹) |
| κ_T | Compresibilidad adiabática de un medio compuesto según el modelo de Reuss y Voigt modificado | (Pa ⁻¹) |
| κ_v | Compresibilidad adiabática según Voigt. | (Pa ⁻¹) |
| λ | Longitud de onda. | (m) |
| λ' | Cociente entre la energía magnética y la energía térmica. | (-) |
| Λ | Factor de contraste de permeabilidad magnética | (-) |
| μ_0 | Permeabilidad magnética del vacío. | (T.m.A ⁻¹) |

| | | |
|--------------|--|--------------------------|
| μ_b | Módulo de cizalla del esqueleto según el modelo de Biot. | (Pa) |
| μ_f | Permeabilidad magnética relativa del fluido. | (T.m.A ⁻¹) |
| μ_s | Permeabilidad magnética relativa del sólido. | (T.m.A ⁻¹) |
| ν_b | Coefficiente de Poisson del esqueleto según el modelo de Biot. | (-) |
| ξ | Coefficiente de dilatación lineal. | (K ⁻¹) |
| ϖ | Factor del modelo de Ahuja para agujas moviéndose perpendiculares al campo acústico. | (-) |
| ϖ' | Factor del modelo de Ahuja para agujas moviéndose paralelas al campo acústico. | (-) |
| ρ | Densidad. | (kg/m ³) |
| ρ_{eff} | Densidad efectiva de un medio compuesto. | (kg/m ³) |
| ρ_f | Densidad de un fluido. | (kg/m ³) |
| ρ_s | Densidad de un sólido. | (kg/m ³) |
| ρ_{11} | Coefficiente de inercia según modelo de Biot. | (kg/m ³) |
| ρ_{12} | Coefficiente de inercia según modelo de Biot. | (kg/m ³) |
| ρ_{22} | Coefficiente de inercia según modelo de Biot. | (kg/m ³) |
| σ | Parámetro modelo Ahuja | (-) |
| τ | Esfuerzo de cizalla. | (Pa) |
| τ_y | Esfuerzo umbral dinámico. | (Pa) |
| Υ | Parámetro modelo de Biot. | (Pa.kg.m ⁻³) |
| ϕ | Fracción de volumen de sólido. | (-) |
| ϕ^* | Fracción de volumen de partículas que no forman estructuras paralelas al campo acústico. | (-) |
| ϕ_f | Fracción de volumen de fluido. | (-) |

| | | |
|---------------|---|-----------|
| φ | Fase de la onda | (rad) |
| χ | Susceptibilidad magnética | (-) |
| ψ_c | Fracción de volumen de partículas que forman estructuras paralelas al campo acústico. | (-) |
| ω | Frecuencia angular. | (rad/s) |
| ω_c | Frecuencia crítica del modelo de Biot. | (rad/s) |
| Ω | Tortuosidad. | (-) |
| a | Radio de partícula esférica o semieje menor de fibra. | (m) |
| a_{po} | Tamaño de poro. | (m) |
| \arg | Argumento | (-) |
| A | Amplitud de señal. | (V) o (-) |
| A_0 | Amplitud inicial. | (V) o (-) |
| A_d | Amplitud tras propagarse una distancia d en un medio. | (V) o (-) |
| A_{final} | Amplitud a la salida del sistema. | (V) o (-) |
| A_i | Amplitud incidente. | (V) o (-) |
| $A_{inicial}$ | Amplitud al inicio del sistema. | (V) o (-) |
| A_t | Amplitud transmitida. | (V) o (-) |
| b | Semieje mayor fibra. | (m) |
| \vec{B} | Campo magnético aplicado. | (T) |
| c | Velocidad de propagación del sonido. | (m/s) |
| c_0 | Velocidad de propagación del sonido, referencia. | (m/s) |
| c_0^ϕ | Velocidad de propagación del sonido cuando no hay un campo magnético aplicado (suspensión) para una fracción de volumen dada. | (m/s) |
| c_B^ϕ | Velocidad de propagación del sonido cuando sí hay un campo magnético aplicado (suspensión) para una fracción de volumen dada. | (m/s) |
| c_g | Velocidad de propagación de grupo. | (m/s) |

| | | |
|-------------|--|----------------------|
| C | Tensor de constantes elásticas. | (Pa) |
| C_{11} | Constante elástica en modelo micromecánico. | (Pa) |
| C^i | Tensor de constantes elásticas de las inclusiones. | (Pa) |
| C^m | Tensor de constantes elásticas de la matriz. | (Pa) |
| C_{ij}^k | Componentes ij del tensor C en el medio k | (Pa) |
| CIP | Hierro en polvo carbonilo. | (-) |
| d | Espesor de la muestra, distancia recorrida por los ultrasonidos. | (m) |
| $e()$ | Incertidumbre. | (-) |
| E_b | Modulo de Young del esqueleto en el modelo de Biot. | (Pa) |
| E_s | Modulo de Young del sólido en el modelo de Biot. | (Pa) |
| ER | Electrorreológico. | (-) |
| f | Frecuencia. | (Hz) |
| F | Factor de forma modelo de Ahuja. | (-) |
| \vec{F}^d | Fuerza debido a la interacción magnética entre dos partículas. | (N) |
| FFT | Transformada rápida de Fourier. | (-) |
| g | Aceleración de la gravedad. | (m.s ⁻²) |
| h | Relación de aspecto. | (-) |
| \vec{H}_0 | Campo magnético aplicado. | (A.m ⁻¹) |
| HT | Harker y Temple. | (-) |
| Im | Parte imaginaria. | (-) |
| I | Tensor Identidad. | (-) |
| k | Vector de onda. | (m ⁻¹) |
| k_b | Constante de Boltzmann | (J/K) |
| K | Módulo de compresibilidad volumétrico. | (Pa) |
| K_b | Módulo de compresibilidad volumétrico del esqueleto en el modelo de Biot | (Pa) |

| | | |
|---------------------|---|----------------------|
| K_f | Módulo de compresibilidad volumétrico del fluido. | (Pa) |
| K_s | Módulo de compresibilidad volumétrico del sólido. | (Pa) |
| L | Coeficiente de inercia. | (-) |
| m | Parámetro de ajuste del modelo de Biot. | (-) |
| \vec{m} | Momento magnético | (A.m ²) |
| \vec{M} | Imanación. | (A.m ⁻¹) |
| M_s | Imanación de saturación. | (A.m ⁻¹) |
| MR | Magnetorreológico. | (-) |
| n | Inversa de la longitud de penetración. | (m ⁻¹) |
| N | Parámetro del modelo de HT. | (-) |
| P | Parámetro del modelo de Biot. | (Pa) |
| Q | Parámetro del modelo de Biot. | (Pa) |
| R | Parámetro del modelo de Biot. | (Pa) |
| \vec{r} | Vector posición. | (m) |
| s | Parámetro de ajuste del modelo de Biot. | (-) |
| $s(t)$ | Señal temporal. | (-) |
| S | Parámetro del modelo de HT. | (-) |
| $S(f)$ | Señal en el dominio de la frecuencia. | (-) |
| t | Tiempo que tarda en recorrer una onda una distancia d . | (s) |
| t | Espesor de las capas de metacrilato. | (m) |
| T | Temperatura. | (°C) |
| $\langle T \rangle$ | Promedio del tensor de Wu. | (-) |
| T_{ijkl} | Componentes del tensor de Wu. | (-) |
| T_{ij} | Coeficiente de transmisión entre las capas ij . | (-) |
| T | Coeficiente de transmisión total del sistema. | (-) |

| | | |
|-----------|-----------------------------|-------------------------|
| v_{sed} | Velocidad de sedimentación. | (m/s) |
| x | Fracción molar. | (-) |
| x | Espesor de cerámicas. | (m) |
| z | Impedancia acústica | (Pa.s.m ⁻¹) |

Capítulo 1

Introducción

1.1. Materiales inteligentes.

¿Qué tienen en común la escultura “Morpho Tower” de Sachiko Kodama, un altavoz, la suspensión de un Audi TT, un embrague y un freno? Aparte de ser elementos que pueden aparecer más o menos comúnmente en la vida cotidiana, en todos ellos un *material inteligente* forma parte de sus componentes.

En la “Morpho Tower” y en un altavoz hay presente un ferrofluido, en la suspensión del Audi TT, un fluido magneto-reológico (MR) y en algunos prototipos de embragues y frenos un fluido electro-reológico (ER). Estos tres fluidos son considerados inteligentes juntos a muchos otros porque una o más propiedades pueden ser cambiadas de una manera controlada por medio de un estímulo externo. En estos casos son campos magnéticos y eléctricos.

Empecemos definiendo brevemente los líquidos magneto-reológicos, pues constituyen el sistema estudiado en esta Tesis. Estos fluidos son suspensiones de partículas magnéticas, ferromagnéticas o superparamagnéticas, en un solvente cuyas propiedades pueden modificarse bajo la acción de un campo magnético. Cuando se deja de aplicar el estímulo externo recuperan en mayor o menor grado su estado inicial. Las partículas constituyentes de estos fluidos suelen presentar tamaños de 1 a 10 micrómetros.

Los fluidos electro-reológicos son el análogo a los fluidos MR, pero se diferencian en que el estímulo externo al que reaccionan las partículas polarizables suspendidas en un líquido no polar, es un campo eléctrico aplicado. Este tipo de fluido fue descubierto y patentado por Winslow en 1949. Inicialmente se estudiaron más en profundidad los fluidos ER que los MR

debido a que la generación del campo externo era más sencilla de realizar; sin embargo, con el paso del tiempo se invirtió esa tendencia. Por ejemplo, varios autores (Bossis *et al.*, 1997; Yalcintas *et al.*, 1999; Pradeep *et al.*, 2001) atribuyen este cambio de tendencia en el estudio de estos fluidos inteligentes a que los cambios obtenidos en el esfuerzo umbral (esfuerzo mínimo necesario para provocar que un sistema empiece a fluir pese al haber aplicado un estímulo externo) en un fluido ER son pequeños, alcanzándose entre 3kPa y 5 kPa, mientras que con un fluido MR se puede llegar a conseguir valores superiores a 100kPa. Además, los fluidos ER son muy sensibles a las impurezas mientras que los fluidos MR no, haciendo que la manipulación sea más sencilla. Por último, la necesidad de altos voltajes, de kV/m en los ER, frente a los bajos campos necesarios con los fluidos MR, hace posible que estos últimos sean objeto preferible de estudio de cara a posibles aplicaciones.

El tercer tipo de material inteligente que se ha mencionado es un ferrofluido o también denominado líquido magnético. De hecho, al igual que los fluidos MR, es una suspensión de partículas magnéticas en un solvente. Aparte de que la naturaleza de las partículas pueda ser distinta, el principal factor que va a marcar una gran diferencia en el comportamiento de estas suspensiones es el tamaño de la partícula. Si en un fluido MR este tamaño es del orden de las micras, en un ferrofluido el tamaño es del orden de los nanómetros. Esta diferencia hace que los ferrofluidos sean más estables que los fluidos MR, pues la agitación térmica previene la sedimentación. Esta agitación térmica hace que los ferrofluidos tengan siempre una apariencia fluida aunque se les aplique un campo magnético, mientras que en un fluido MR se pueden apreciar las partes “sólidas” bajo la influencia del agente externo. Por último, y a causa de la ausencia de estructuras aparentemente sólidas, los cambios en las propiedades bajo el efecto de un campo magnético no son tan notables como en los MR.

Al hablar de fluidos magnéticos, un concepto que está siempre presente es el movimiento browniano. Éste es el movimiento aleatorio que se puede observar en algunas partículas que se hayan suspendidas en un medio fluido debido a la agitación térmica de las moléculas que forman dicho fluido.

Esta agitación puede tener mucha importancia o ser despreciable dependiendo de las propiedades de la suspensión. De hecho, hay veces que esta energía térmica es suficiente para vencer el efecto gravitatorio de modo que, aunque haya partículas con mayor densidad que la del solvente en la que se encuentran suspendidas, éstas no sedimentan. Igualmente, esta energía térmica puede ser comparable con la energía de interacción magnética entre dos partículas, determinando que el proceso de agregación de las partículas sea reversible o irreversible bajo la acción del campo magnético. Para comparar estas energías, por lo general se definen unas relaciones entre las energías de las interacciones y la térmica para ver cuál predomina. En esta Tesis se ha trabajado con campos magnéticos que se encuentran entre 10 mT y 212 mT (en unidades de campo H corresponde con 8 kA/m y 169 kA/m), partículas cuyo tamaño promedio es de unas 2.5 micras de radio, y una temperatura entre 25 °C y 55°C. Si se define el cociente entre la energía magnética entre dos dipolos, U^d , y la energía térmica, $k_B T$, como λ' ; para el caso de dos partículas de radio a y momento magnético \vec{m} en contacto, alineadas en la dirección del campo magnético aplicado y suspendidas en un solvente cuya permeabilidad magnética relativa es μ_f encontrándose a una temperatura T, se tiene la siguiente expresión:

$$\lambda' = \frac{U^d}{k_B T} = \frac{\mu_0 \mu_f |\vec{m}|^2}{16\pi a^3 k_B T} \quad (1.1)$$

Con el rango de valores dados en el párrafo anterior, y considerando que $\mu_f \approx 1$, se observa que la energía magnética es varios órdenes de magnitud superior a la energía térmica. Por lo tanto, en esta Tesis este fenómeno no será relevante. Esto no ocurre así en ferrofluidos en los que la energía térmica puede ser similar o incluso mayor que la energía magnética, justificando la gran diferencia en comportamiento de estos dos tipos de fluidos pese a sus aparentes similitudes.

1.2. Fluidos magneto-reológicos (MR)

Los fluidos MR tienen la capacidad de cambiar algunas de sus propiedades en cuestión de milisegundos cuando se ven sometidos a un campo magnético externo. Estos tipos de fluidos fueron descubiertos en 1951 por Rabinow algún tiempo después que los ER. El cambio en las propiedades ya sean reológicas, ópticas, acústicas... se produce porque sin campo magnético aplicado las partículas se encuentran suspendidas en un líquido, comportándose el conjunto como un medio también fluido; sin embargo, al someter a la suspensión a un campo magnético, se induce un dipolo magnético en cada una de las partículas que al interaccionar con el campo y entre ellas mismas provoca su agregación con un cierto orden, apareciendo un cambio de estructura. Se pasa, por lo tanto, a un estado con una estructura más ordenada debido a la interacción entre las partículas que las mantiene agregadas. Debido a este reordenamiento y a la diferencia de propiedades magnéticas de las partículas y el fluido, se generan los cambios en las propiedades de estos materiales.

1.2.1. Composición

Una de las grandes compañías de fabricación de este tipo de materiales da unas nociones básicas de cómo fabricar uno de ellos en un documento público denominado “Do it yourself” (LordCo). En este documento se explica cómo obtener un fluido cuyas propiedades cambian al aplicar un campo magnético sin más que mezclar concienzudamente limaduras de hierro, aceite lubricante para coche y grasa de litio. Si bien parece un procedimiento fácil, dar con los componentes adecuados para conseguir un fluido estable y cuyos cambios sean grandes no es sencillo. De hecho una gran parte de la investigación en este campo se dedica a tratar de lograr fluidos cuyos cambios sean reproducibles, que no presenten histéresis y que sean muy estables.

Hay un gran número de trabajos que tratan sobre los componentes de estos fluidos (Pradeep *et al.*, 2001; Claracq *et al.*, 2004; Olabi *et al.*, 2007; de Vicente *et al.*, 2011). A continuación se presenta una pequeña revisión sobre algunos de los más relevantes.

Partículas. Las partículas son un componente muy importante, pues la imanación inducida que sufren cuando se les aplica el campo magnético y las interacciones entre ellas que producen el cambio en la microestructura del material son las responsables del efecto MR.

Se suelen usar partículas esféricas ferromagnéticas como pueden ser ferritas de níquel-zinc (Phulle *et al.*, 1999), aunque son las partículas de hierro carbonilo de tamaño micrométrico las más comúnmente utilizadas ya que su alta imanación de saturación ($\mu_0 M_s = 2.1T$), su baja coercitividad (materiales blandos que se pueden imanar y desimanar fácilmente) y su alta pureza, las hacen excelentes para posibles aplicaciones.

Sin embargo, también se han utilizado otro tipo de materiales consiguiendo mejorar la estabilidad, la redispersibilidad, la reducción de la aparición de efectos histeréticos e, incluso, en algunos casos se ha logrado incrementar el efecto MR. Por ejemplo, se han utilizado partículas superparamagnéticas de magnetita de tamaño nanométrico embebidas en polímero (Domínguez-García *et al.*, 2005), se han realizado fluidos dimórficos en los que una parte de las microesferas han sido sustituidas por nanohilos de hierro (Ngatu *et al.*, 2008) o por fibras de tamaño micrométrico (Lopez-Lopez *et al.*, 2007; Bell *et al.*, 2008; López-López *et al.*, 2009). Otra técnica utilizada ha sido la realización de fluidos bidispersos, esto es, con presencia de dos tamaños de partículas esféricas, ya sea juntando partículas de tamaño micrométrico con otras de tamaño nanométrico (Wereley *et al.*, 2006), o ya sea mezclando partículas micrométricas siendo unas de pocas micras de diámetro y otras de decenas (Trendler *et al.*, 2005). Otro tipo de solución propuesta es la sustitución de una parte de las partículas magnéticas por otras no magnéticas (Ulicny *et al.*, 2010).

Solvente. Su función es la de permitir que las partículas estén en suspensión. Para algunas aplicaciones se requiere que puedan actuar como lubricantes y presenten viscosidades bajas para que el cambio en las propiedades reológicas sea más notorio. Es muy común la utilización de aceites minerales, aceites de silicona o hidrocarburos, aunque también se usa agua. Sin embargo, también existen diferentes innovaciones como la utilización de líquidos iónicos, pues sus propiedades pueden ser modificadas sin más que cambiar los iones (Guerrero-Sanchez *et al.*, 2007), o la utilización de emulsiones de aceite en agua modificando la superficie de las partículas haciéndolas hidrófilas, consiguiendo así un retardo de la sedimentación (Park *et al.*, 2001).

Aditivos. Debido a la desadaptación de densidades entre las partículas y el fluido, los procesos de agregación entre partículas y la presencia de remanencia magnética hacen necesaria la adición de sustancias de diferente naturaleza que permitan una mejor estabilización de las suspensiones. Esto se puede lograr por medio de surfactantes o polímeros que previenen la agregación de partículas (López-López, 2005; Olabi *et al.*, 2007), agentes tixotrópicos como son las fibras de carbono anisótropas o grasas, como la grasa de litio, que al ser añadidos al solvente actúan como espesantes aumentando la viscosidad y generando una especie de gel (de Vicente *et al.*, 2011), e, incluso, algunos agentes como las arcillas orgánicas o las nanopartículas de silicio que, aparte del efecto gel que generan, también se adhieren a las partículas magnéticas mejorando su redispersibilidad (Lim *et al.*, 2004; López-López, 2005; López-López *et al.*, 2008).

1.2.2. Microestructura

Una vez descritos los posibles componentes de los fluidos MR, es necesario analizar los conocimientos existentes sobre su microestructura, pues, debido a la diferencia de propiedades magnéticas entre el fluido y las partículas, bajo la acción de un campo magnético se induce un cambio en la estructura que será el responsable de los cambios de las propiedades.

Cuando no hay campo aplicado parece coherente que la estructura de los fluidos MR sea la de una suspensión, pudiendo aparecer algún tipo de agregación entre las partículas de tipo débil. Esta visión está altamente aceptada.

Está bien reconocido el hecho de que la microestructura que se forma en un fluido MR bajo la acción de un campo magnético uniaxial uniforme va a depender de diversos factores, como son la intensidad de campo aplicado, la forma del incremento de campo aplicado, la fracción de volumen, la viscosidad del solvente o el tamaño de la celda de medida (Mohebi *et al.*, 1996; Martin *et al.*, 1999; Melle, 2002).

Para bajas fracciones de volumen, la microestructura formada e, incluso, el proceso de formación son bastante bien conocidos. Hay resultados experimentales usando técnicas

ópticas, simulaciones y modelos teóricos que describen adecuadamente esta situación como se mostrará al explicar los mecanismos de agregación.

Para fracciones de volumen altas, sin embargo, hay muy pocas publicaciones y no está aún claro qué es lo que ocurre. Hay que recordar que en la mayoría de las aplicaciones se usan fluidos MR de alta fracción de volumen, por lo que conocer su estructura es un tema importante. Sobre esta temática hay algunas publicaciones que han utilizado simulaciones para describir la posible microestructura bajo estas condiciones (Martin *et al.*, 1999).

Mecanismo de agregación $\lambda' - \phi$

En los fluidos MR habituales $\lambda' \gg 1$, esto implica que la interacción magnética domina a la térmica de modo que se favorece la agregación de partículas formando estructuras más complejas. Según (Furst, 2000), el proceso de agregación tiene lugar en dos fases. Inicialmente, en pocos milisegundos, la mayoría de las partículas se unen formando cadenas a lo largo de la dirección del campo magnético aplicado. Tras esta primera orientación, estas cadenas pueden interaccionar lateralmente formando columnas más gruesas o estructuras más complejas dependiendo de la fracción de volumen (Fermigier *et al.*, 1992; Martin *et al.*, 1992).

El proceso de formación y la tipología de las columnas dependerán de la existencia de fluctuaciones térmicas, de la presencia de defectos, de la fracción de volumen (define la distancia entre partículas y posteriormente entre estructuras) y de la intensidad de campo magnético aplicado (tiene influencia en la rigidez de las estructuras formadas, en la importancia de las fluctuaciones térmicas y en el valor del potencial atractivo de los defectos).

Cuando las suspensiones MR no son diluidas se favorece la interacción lateral entre cadenas. Cuando las cadenas son suficientemente largas y la agregación en los extremos es demasiado lenta, si la distancia entre cadenas es pequeña, se produce la formación de columnas por agregación lateral uniéndose dos cadenas por un punto y el resto de la cadena se unen como si fuera una cremallera. Para fracciones de volumen altas se forman estructuras más complejas (Fermigier *et al.*, 1992).

Para bajas fracciones de volumen y altos campos aplicados no se debería producir interacción lateral, dando como resultado una agregación en largas cadenas. Esto es debido a que para campos altos las cadenas son muy rígidas, haciendo que la interacción sea de corto alcance. De esta forma, si la fracción de volumen es baja, no tendría por qué haber estructuras cercanas dificultando que se produzca la interacción. Esta interacción a corto alcance, si se diera, sería atractiva o repulsiva dependiendo de la posición relativa entre cadenas. Además, para distancias largas la interacción es repulsiva (Furst *et al.*, 2000).

De todos modos, en un sistema real es esperable que las fluctuaciones térmicas y los defectos topológicos de las cadenas causen variaciones de la densidad de momento magnético a lo largo de la misma, rompiendo la simetría en la dirección perpendicular al eje de la cadena. Estas variaciones de la densidad de momento magnético harán que se favorezca la interacción lateral y se pudieran formar columnas.

El modelo de Hasley y Toor (Halsey *et al.*, 1990; Martin *et al.*, 1992; Toor, 1993; Martin *et al.*, 1999) describe el efecto de las variaciones térmicas. Debido a ellas, las estructuras sufren variaciones locales de la densidad de momento dipolar dando lugar a interacciones laterales de largo alcance entre cadenas, produciéndose una interacción atractiva que depende de la quinta potencia de la distancia.

Este modelo fue modificado (modelo de Hasley y Toor modificado, (Martin *et al.*, 1992), para hacer que la interacción fuese dependiente del campo magnético aplicado para fracciones de volumen moderadas donde la separación entre partículas es menor.

Además, Martin *et al* pusieron de manifiesto la importancia de la presencia de defectos topológicos en las cadenas que aparecen principalmente a altas fracciones de volumen (Martin *et al.*, 1999). En este trabajo, donde se realizan simulaciones de sistemas con fracciones de volumen altas (0.1-0.5), se muestra cómo los defectos locales crean variaciones en la densidad de momento magnético, induciendo modificaciones en el campo local lateral y formando columnas aun considerando que la interacción térmica fuese despreciable. La aparición de

estos defectos puede estar supeditada a la polidispersión del tamaño de partículas o la rugosidad.

Furst y Gast presentan como resumen una gráfica muy interesante donde se muestran las posibles estructuras que pueden aparecer en función de los parámetros antes comentados (Furst *et al.*, 2000). Melle introduciendo alguna especificación más presenta en su Tesis la figura 1.1 (Melle, 2002).

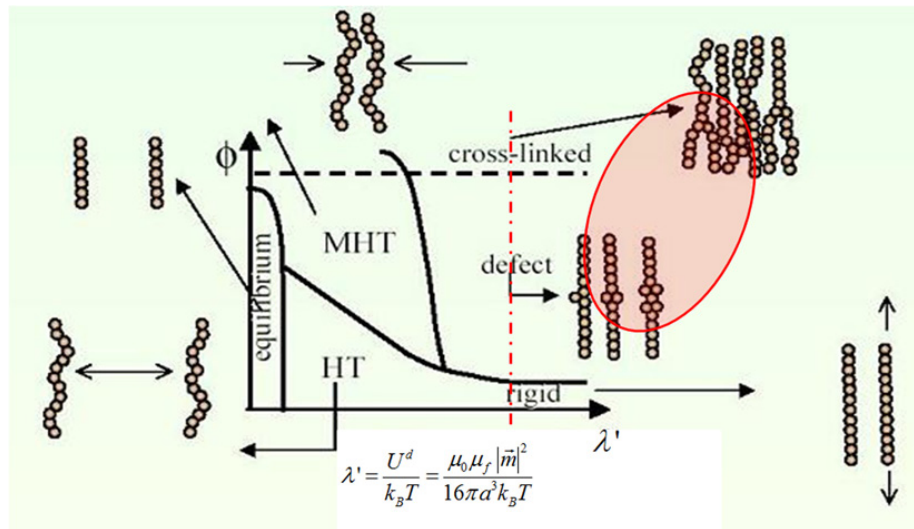


Figura 1.1 Posibles microestructuras que aparecen en fluidos MR dependiendo de la fracción de volumen, ϕ , y de la relación entre la energía magnética y la térmica, λ' . El área roja indica aproximadamente en qué región nos encontramos en esta tesis.

Para bajas fracciones de volumen, se forman cadenas que están muy separadas entre sí. Si se aplican campos de baja intensidad no aparece interacción lateral. Para campos más altos, avanzando en el eje λ' , tienen lugar interacciones de largo alcance debido a que las fluctuaciones de tipo térmico dominan la agregación lateral, siendo el modelo de Hasley y Toor el que describe dicha agregación lateral. Para campos muy altos se forman cadenas laterales muy rígidas que no interaccionarán lateralmente.

Para fracciones de volumen mayores, avanzando en el eje ϕ , pero campos bajos, será el modelo de Hasley y Toor modificado el que rija la agregación lateral. Sin embargo, al aumentar la intensidad del campo magnético predomina la aparición de defectos estructurales en las cadenas.

Siempre y cuando se aumente la fracción de volumen y la intensidad de campo magnético la estructura es mucho más compleja, apareciendo estructuras laberínticas a través de conectividades entre cadenas, no sólo en la dirección del campo magnético aplicado sino también en la perpendicular.

En esta Tesis se va a trabajar con fracciones de volumen e intensidades variables, desde 0.01 a 0.35 y desde 20mT a 212 mT, respectivamente. Según la Figura 1.1 nos encontraremos principalmente en la región campos magnéticos moderados y altos y a altas fracciones de volumen (área roja). De hecho, las observaciones realizadas en la Tesis por medios ópticos muestran que las estructuras observadas son siempre, o columnas o estructuras laberínticas. Estas estructuras se ven favorecidas porque el tamaño de la celda es grande.

Los trabajos publicados nos sirven principalmente como base para entender lo que ocurre en estos fluidos MR, aunque luego a la hora de extrapolar a fracciones de volumen más grandes es difícil poder obtener alguna conclusión relevante.

Mohebi en su trabajo, (Mohebi *et al.*, 1996), demuestra la importancia de la longitud de la celda y de la velocidad con la que se aumenta el campo magnético aplicado, pues dependiendo de estos dos factores se favorece la aparición de unas estructuras más o menos complejas. Así se muestra cómo las dimensiones de la celda influyen en que las cadenas formadas puedan ser más o menos largas. Como se dijo anteriormente, cuando hay dos cadenas finitas la interacción entre ellas puede ser atractiva o repulsiva dependiendo de su tamaño, de la distancia entre ellas y del desplazamiento vertical entre las mismas. Se ha observado que una mayor longitud de celda favorece la interacción atractiva entre cadenas en un rango más amplio de ángulos y distancias, generando así estructuras más complejas.

Si consideramos una muestra en la que la celda sea grande, de milímetros, hay un gran número de cadenas con tamaños, posiciones y desplazamientos relativos aleatorios, haciendo que el sistema presente muchos mínimos de energía aparte del mínimo absoluto. Si se aplica un campo magnético con una rampa de intensidad abrupta, lo más probable es que el sistema se adecúe a uno de esos mínimos sin necesidad de llegar a la configuración de mínima energía,

haciendo que la estructura sea aún más compleja que lo expuesto en el apartado donde se comentaban los diferentes mecanismos de agregación.

1.2.3. Reología

Si hay una disciplina que se ha usado más profusamente para el estudio de estos fluidos es sin duda alguna la Reología. Los cambios que se producen en los parámetros reológicos son tan importantes que es natural que la búsqueda principal de aplicaciones haya ido por esa rama de la ciencia.

Cuando no hay campo magnético aplicado se supone que la suspensión se comporta idealmente como un fluido newtoniano. Sin embargo, cuando se le aplica un campo magnético se le considera como un plástico de Bingham según se muestra con algo más detalle en el capítulo 2 (Rabinow, 1948; Bossis *et al.*, 2002; Bica, 2006; Vékás, 2008).

En concreto, en dicho capítulo se comenta la importancia del esfuerzo umbral que se define como el mínimo valor que debe de tomar el esfuerzo aplicado para hacer que comience a fluir el sistema y que es característico de los comportamientos tipo plásticos de Bingham. Este parámetro está relacionado con la fuerza necesaria para inducir la ruptura de las estructuras formadas al aplicar el campo magnético (Bossis *et al.*, 2003).

Los modelos existentes para describir el esfuerzo umbral son de dos tipos, macroscópicos y microscópicos. Los macroscópicos están basados en una descripción de las estructuras formadas teniendo en cuenta la anisotropía de las mismas bajo la tensión aplicada y pequeñas deformaciones (Bossis *et al.*, 1997). El modelo microscópico, sin embargo, tiene en cuenta las interacciones interparticulares (Klingenberg *et al.*, 1990; Ginder *et al.*, 1996). En estos tipos de modelos la tensión aplicada está dominada por la interacción magnética entre las partículas y, por lo general, sólo son válidos para fracciones de volumen bajas.

Para fluidos MR comerciales solamente los modelos microscópicos y no los macroscópicos han conseguido un razonable acuerdo con los resultados experimentales. En estos modelos el esfuerzo umbral es proporcional al cuadrado del campo aplicado para pequeñas intensidades de campo; al aumentar el campo, la relación es subcuadrática ($3/2$) debido a que se comienza a saturar la muestra y, una vez saturada, esta tensión se hace independiente del campo. Respecto a la fracción de volumen, según los modelos se supone que debería variar linealmente, aunque en realidad sólo ocurre para fluidos diluidos y a intensidades bajas de campo. Por lo general, para fracciones de volumen mayores la evolución de la tensión es más rápida que una relación lineal, pues las estructuras son más complejas que las cadenas.

Al ser la Reología el campo científico más utilizado en el estudio de estos fluidos MR, es aquí donde han surgido más aplicaciones tecnológicas. Algunos ejemplos son los siguientes:

- Suspensiones en coches, como el Ferrari FF que usa el sistema de amortiguación Scm3, el Audi TT con el sistema de amortiguación Delphi MagneRide o el sistema de suspensiones de Lord para vehículos militares.
- Frenos (Olabi *et al.*, 2007).
- Amortiguación de vibraciones sísmicas (Dyke *et al.*, 1996).
- Control de válvulas (Carlson *et al.*, 2000; Klingenberg, 2001).
- Pulimento de precisión (Kordonski *et al.*, 2002; Jha *et al.*, 2004).
- Articulaciones artificiales (Herr *et al.*, 2003).
- Otras aplicaciones biomédicas (Liu *et al.*, 2001).

Como se mencionó en la revisión de los componentes de los fluidos MR, la gran mayoría de las innovaciones persiguen mejorar el proceso de sedimentación y redispersión de las partículas. Esto es debido a que los mayores inconvenientes que presentan estos fluidos para dar paso a una aplicación tecnológica vienen ocasionados por el inevitable proceso de sedimentación que sufren. Esta sedimentación es resultado de la desadaptación de densidades de los componentes y sólo puede ser retrasada pero nunca suprimida. Un segundo

inconveniente consiste en que tras varios ciclos de uso las suspensiones se encuentran aglomeradas, perdiendo parte de la efectividad para la que habían sido diseñadas inicialmente. Este último problema se denomina “espesamiento debido al uso”.

1.2.4. Acústica

En comparación con los estudio reológicos realizados con fluidos MR, la caracterización acústica de los mismos ha sido tratada en un número muy reducido de trabajos. En concreto, y acorde con el tema que nos ocupa en esta tesis, se presenta a continuación una revisión de los mismos.

Hay un primer grupo de trabajos que presentan exclusivamente resultados experimentales sobre las propiedades acústicas de estos fluidos. Algunos de los resultados obtenidos en estos trabajos serán comentados más adelante en el capítulo 4, pues, aunque se trabajan en condiciones diferentes, cabe la posibilidad de compararlos con los resultados obtenidos en esta Tesis. En esta serie de trabajos se presentan algunas propiedades de fluidos MR comerciales como las que se detallan a continuación.

- Efecto del barrido de intensidad de campo magnético sobre los fluidos MR (Bramantya *et al.*, 2011a). En este trabajo se concluye que, al aplicar un campo magnético de manera brusca, los cambios en la velocidad de propagación son ligeramente diferentes a los que aparecen si se incrementa el campo de forma gradual debido a que se genera una estructura más laberíntica. Estos resultados podrían estar de acuerdo con otros trabajos no acústicos, (Promislow *et al.*, 1996; Weijia *et al.*, 1999; Ly *et al.*, 2001), en los que la aplicación de un campo lentamente induce estructuras más cercanas al equilibrio energético que situaciones en las que se aumenta el campo rápidamente.
- Efecto de anisotropía en la velocidad de propagación bajo la acción de un campo magnético (Bramantya *et al.*, 2009; Bramantya *et al.*, 2010). Los autores obtienen que

la velocidad de propagación cuando el campo magnético se aplica de manera paralela a la propagación acústica siempre es superior a la obtenida cuando se aplica de forma perpendicular a ella. Además, en ambas situaciones siempre aparecen fenómenos de histéresis aunque al ser un fluido comercial, éstos son pequeños. En este trabajo el comportamiento con la intensidad de campo no es uniforme en el sentido en que hay veces que el aumento de intensidad de campo provoca aumentos y en otros casos disminuciones de la velocidad para el mismo fluido estudiado.

- Por último, Bramantya et al estudian otros factores que son influyentes en las propiedades de estos fluidos (Bramantya *et al.*, 2011b). Por ejemplo, para determinar el efecto de la fracción de volumen se han usado tres fluidos comerciales con fracciones de volumen de partículas de 0.22, 0.32 y 0.40. Se ha comprobado que el cambio en velocidad de propagación del sonido; al comparar la situación en la que hay un campo magnético aplicado y cuando no lo hay, es mayor cuanto mayor sea la fracción de volumen. Sin embargo, su comportamiento con la intensidad no es uniforme en el sentido en que, en algunos casos, ese cambio de velocidad es positivo (fracciones más altas) y en otros es negativo (fracciones más bajas). Al aumentar la temperatura, se ha comprobado que la velocidad de propagación disminuye, siendo este cambio más notable cuando hay un campo magnético aplicado. Por último, se ha observado que, al aplicar un campo magnético a estos fluidos, se logra retrasar el proceso de sedimentación, aunque dependiendo de la intensidad de campo aplicado, a veces, no llega a inhibirse dicho proceso.

En este grupo de trabajos experimentales expuestos anteriormente no se presenta ninguna justificación teórica, sino que se argumenta simplemente que estos cambios son debidos al cambio de estructura que se produce al aplicar el campo magnético, pasando de un estado desordenado a otro en el que la formación de aglomerados orientados dan lugar a un mayor orden. Los resultados de los cambios de velocidad negativos y/o positivos los argumentan diciendo literalmente que, cuando el área de fluido es mayor que el de sólido formado (debido a los aglomerados), la velocidad es negativa; mientras que, cuando se aumenta el campo magnético de manera considerable, los aglomerados son suficientemente

grandes como para influir en mayor manera en la velocidad de propagación haciendo que esta aumente (Bramantya *et al.*, 2011a).

Hay otro grupo de tres publicaciones donde se propone un modelo teórico para la propagación en fluidos MR (Nahmad-Molinari *et al.*, 1999; Donado *et al.*, 2001; Donado *et al.*, 2002). Desde el punto de vista experimental, son artículos que no describen en detalle las condiciones de medida. Indican que el sistema estudiado consiste en suspensiones de partículas micrométricas, hierro en glicerina y óxido de hierro en aceite de silicona. Sin más explicaciones de los componentes, estos fluidos deberían de ser altamente inestables debido a la desadaptación de densidades entre el fluido y partículas y las reducidas viscosidades de los solventes. Sin embargo, no hablan en ningún momento de esa inestabilidad ni de cómo la han evitado o tenido en cuenta. Tampoco especifican la forma de aplicación del campo magnético, indicando solamente que trabajan a bajas intensidades de campo.

Estos artículos muestran la aparición de dos modos de propagación longitudinales al aplicar un campo magnético sobre estos fluidos MR cuando la longitud de onda es mucho mayor que el tamaño de las partículas y en el rango de frecuencias bajas. Ambos modos los explican a través de un modelo efectivo para la velocidad de propagación y son dependientes de la intensidad de campo aplicada. Se considera, que al aplicar un campo magnético, las estructuras van a formar cadenas (Nahmad-Molinari *et al.*, 1999) o aglomerados (Donado *et al.*, 2001; Donado *et al.*, 2002) de modo que entre las estructuras formadas van a quedar canales en los que, pese al campo magnético aplicado, todavía quedan algunas partículas, pocas, en suspensión.

El primer modo de propagación consistiría en la propagación en un medio efectivo a través de los canales de fluido donde hay presente alguna partícula de tamaño micrométrico libre en suspensión. En el trabajo de Nahmad-Molinari *et al.* (Nahmad-Molinari *et al.*, 1999), se presentan cambios de hasta 500 m/s mediante la aplicación de un campo magnético de 50 mT. Estos cambios se podrían considerar desproporcionados teniendo en cuenta que en los artículos detallados dentro del bloque experimental los máximos cambios encontrados son de unos 50 m/s para un campo aplicado de 500mT (Motozawa *et al.*, 2005).

El segundo modo de propagación consistiría en la propagación a través de “otro” medio efectivo, siendo esta vez la contribución a la parte sólida la de las estructuras aglomeradas de mayor tamaño y no las partículas libres micrométricas. En estos artículos se presenta una distribución del tamaño de los aglomerados siendo unas 30 veces mayores que el tamaño de las partículas individuales (para el 0.07 de fracción de volumen y bajo la acción de un campo de 50 mT). Además, en este segundo modo la compresibilidad vendría regida por la interacción dipolar entre dos dipolos magnéticos y no la compresibilidad del sólido, resultando una velocidad de propagación de unas decenas de m/s. En el trabajo de Nahmad-Molinari et al (Nahmad-Molinari *et al.*, 1999), se trata de explicar este modelo como un modo de propagación lento de Biot en un material poroso, pero como se verá más adelante en el capítulo 2 donde se comenta el modelo de Biot y como se publica en el trabajo de Jhonson, (Johnson, 2000), es difícil entender este modo de propagación como tal, porque en el límite de bajas frecuencias el modo lento es un modo altamente atenuado.

En los otros dos trabajos,(Donado *et al.*, 2001; Donado *et al.*, 2002) se sigue presentando el modo de propagación como la propagación efectiva a través de una suspensión de aglomerados, pero esta vez no se trata de explicarlo como si fuera un modo de Biot. La aparición de este modo no ha sido observada en ningún otro trabajo de fluidos MR. Debido principalmente a que los resultados y las condiciones experimentales son altamente inciertos y no han podido ser reproducidos, a que el segundo modo de propagación ha sido observado en exclusiva en este trabajo, y, por último, a que no se tiene en ningún momento en consideración el posible cambio en la orientación de las estructuras, este modelo no será aplicado en esta Tesis pues no explicaría en ningún caso los resultados experimentales que se han observado durante su realización.

Por último, en la literatura aparece un estudio teórico sobre la posible aplicación de estos fluidos MR como una capa de adaptación de impedancias activa en transductores ultrasónicos piezocerámicos (Mulholland *et al.*, 2007). Las capas de adaptación de impedancias están formadas por materiales, cuyo valor de impedancia acústica cumple ciertos requisitos de modo que la transmisión entre la piezocerámica del transductor y el medio al que se transmite la

energía acústica sea máxima. Con estos fluidos MR se podría conseguir un medio cuya impedancia fuese variable (a través del cambio obtenido en velocidad de propagación) sin más que aplicar un campo magnético externo. Con esto se conseguiría que, si las propiedades del sistema que hay que inspeccionar cambian, aplicando un campo magnético a nuestra capa de adaptación, la impedancia podría modificarse de forma automática para obtener una transmisión óptima. La utilidad de esta aplicación se basa en los cambios en velocidad presentados en el trabajo de Nahmad-Molinari et al (Nahmad-Molinari *et al.*, 1999), los cuales, según se ha comentado, no han podido ser repetidos en trabajos posteriores por otros autores.

1.2.5. Conclusión.

Tras la revisión del estado del arte, se puede apreciar que todavía existe un importante desconocimiento sobre el tipo de microestructura formado a altas fracciones de volumen cuando se aplica un campo magnético a los fluidos MR. Aunque la caracterización de las propiedades reológicas está mucho más desarrollada, también se necesitan nuevas técnicas para poder obtener con mayor precisión algunos parámetros importantes, como es el caso del esfuerzo umbral, y así complementar la información obtenida mediante los convencionales reogramas.

Finalmente, podemos afirmar que hay muy pocos trabajos sobre la caracterización acústica de estos fluidos MR, por lo que se necesita hacer un análisis más exhaustivo al respecto, para así conocer con precisión la influencia de algunos factores ya estudiados y, además, realizar el estudio en otras condiciones y con otros parámetros.

Todos estos estudios permitirían tener un conocimiento más completo de las propiedades de estos fluidos, especialmente bajo la acción de un campo magnético externo. Este conocimiento contribuirá a mejorar el rendimiento en las aplicaciones existentes e, incluso, permitiría el desarrollo de otras nuevas en otros campos menos estudiados.

1.3. Objetivos

Los objetivos principales que se han perseguido en la realización de esta Tesis se muestran a continuación.

1. Caracterización de fluidos MR por medio de ultrasonidos.

- Desarrollo de un montaje experimental que permita estudiar las propiedades de fluidos MR.
- Desarrollo de fluidos MR estables conociendo sus componentes.
- Obtención de las propiedades acústicas bajo la acción de diferentes factores influyentes en las propiedades de estos fluidos (fracción de volumen, sedimentación, temperatura, propiedades del campo aplicado e histéresis)
- Revisión y análisis de modelos teóricos de propagación de ondas elásticas en fluidos MR.

2. Profundización en el conocimiento de la microestructura y su dependencia con la fracción de volumen y, en especial, para fracciones de volumen moderadas y altas (hasta un 0.35).

3. Utilización de los ultrasonidos como una técnica complementaria a los ensayos reológicos para el estudio del proceso de ruptura de la microestructura de estos fluidos bajo la acción de un campo magnético y un esfuerzo de cizalla.

1.4. Contenidos.

Tras esta introducción, la Tesis doctoral se presenta dividida en los siguientes capítulos.

En el capítulo 2 se expone el marco teórico en el que se encuadra la investigación que se ha llevado a cabo. Este capítulo pretende ser una sección de fácil y rápido acceso a la teoría que soporta los resultados experimentales que se presentan posteriormente. Se introducen los conceptos básicos relacionados con el magnetismo, la acústica y la reología, que permiten describir de una manera genérica lo que está ocurriendo en nuestros sistemas de estudio, los fluidos MR. Se especifican algunos tipos de interacciones magnéticas entre partículas y

estructuras como ejemplos de las que tienen lugar en nuestro sistema a un nivel más complejo. Se describen los modelos de propagación acústica que serán posteriormente utilizados, tanto bajo la acción de un campo magnético como sin él. Por último, se muestra una serie de conceptos relacionados con la sedimentación y la reología.

En el capítulo 3 se presentan en primer lugar los fluidos MR estudiados, incluyendo el proceso de síntesis y de preparación. Se describen las técnicas experimentales utilizadas en detalle que engloban medidas de parámetros acústicos, obtención de imágenes por medio de videomicroscopía, generación de campos magnéticos por medio de diferentes fuentes, calibración del sistema en función de la temperatura y obtención de parámetros reológicos. También se detallan los cálculos para la obtención de las velocidades de propagación y de la atenuación e, igualmente, se hace una discusión sobre la obtención de las incertidumbres de estas medidas.

En el capítulo 4 se muestran todos los resultados obtenidos, experimentales y teóricos, y su discusión. En este capítulo se ha analizado en profundidad el efecto de la fracción de volumen en las propiedades acústicas de los fluidos MR, así como la influencia de la aplicación de un campo magnético, relacionando esos cambios con las variaciones de microestructura que se producen por el efecto del aumento de partículas del fluido y de la presencia del campo externo. Posteriormente se ha pasado a describir el proceso de sedimentación característico de este tipo de suspensiones y las consecuencias de la variación de temperatura sobre la velocidad de propagación y la atenuación. Estos dos efectos también han sido caracterizados tanto con campo magnético aplicado como sin él. En este mismo capítulo se ha analizado el efecto del campo magnético aplicado, estudiándose la repercusión de la variación de la intensidad de campo en las variaciones de las magnitudes acústicas, la aparición de anisotropía e histéresis e, incluso, la influencia de utilizar diferentes fuentes de campo magnético. Por último, y debido a la importancia de estos fluidos en el campo de la reología, se han realizado dos ensayos en los que, de manera simultánea, se han tomado medidas acústicas a la vez que se realizaba un reograma para así obtener una relación entre las dos técnicas y establecer paralelismos que permitan caracterizar de forma más detallada estos fluidos.

En el capítulo 5, por último, se dan a conocer las conclusiones obtenidas durante esta Tesis y las líneas de trabajos futuros.

Capítulo 2

Teoría

Este capítulo responde a dos objetivos diferentes. El primero es proporcionar las bases teóricas que posibiliten entender y analizar los resultados mostrados en el capítulo 4, y el segundo, revisar la terminología y las nociones básicas que han sido utilizadas durante esta Tesis y que van a permitir a lectores procedentes de las diferentes disciplinas tratadas, un seguimiento lo más sencillo posible de aquellos aspectos que puedan resultar más ajenos.

2.1. Magnetismo

Como se ha hecho notar en el primer capítulo de la Tesis, la microestructura que aparece en los fluidos MR, especialmente cuando se le aplica un campo magnético y la fracción de volumen es elevada, es altamente compleja, difícil de modelar y por lo tanto difícil de predecir. Sin campo magnético estos fluidos parecen comportarse como suspensiones, mientras que, cuando se les aplica un campo magnético, su estructura pasa a ser más ordenada, produciéndose importantes cambios de sus propiedades.

Cuando hay campo magnético aplicado y la concentración es baja, se suele considerar que se forman cadenas de partículas que, dependiendo de la intensidad de campo, pueden interaccionar dando lugar a “columnas” cuyo grosor es dependiente de la concentración. Según se va aumentando la fracción de volumen, se produce una interacción mayor entre estas columnas llegando a formarse un entramado de fibras difícil de definir estructuralmente. Lo más parecido visualmente podría ser un material sólido con poros abiertos rellenos de un fluido.

Para poder predecir la formación de estas estructuras de manera precisa, deberían considerarse interacciones multipolares, multicuerpo, hidrodinámicas y correcciones de campos locales, lo cual no es el objetivo de esta Tesis. En este apartado se pretende dar unas ideas básicas para explicar de manera sencilla lo que ocurre en los fluidos magneto-reológicos bajo la acción de un campo magnético. Para ello se ha recurrido a simplificaciones adecuadas a un pequeño número de partículas, para aproximarnos en cierto modo a lo que ocurre en el problema real.

2.1.1. Efecto de un campo magnético sobre un fluido MR

Como se ha explicado, estos fluidos MR son suspensiones de partículas magnéticas en un fluido que actúa de solvente. En nuestro caso son partículas de hierro carbonil con un diámetro entre 1 y 10 micras. Este tipo de partículas tiene un comportamiento ferromagnético. Un material ferromagnético se caracteriza por presentar una imanación espontánea, M_s , en ausencia de un campo magnético externo. Esta imanación espontánea varía con la temperatura. Cuando la temperatura es superior a la temperatura crítica de Curie, el material deja de ser ferromagnético para comportarse como paramagnético. La temperatura de Curie para el hierro está en torno a los 1043K. En esta Tesis se han usado temperaturas no superiores a 50°C, lo que corresponde a 323K, por lo que nuestras partículas siempre se comportan como ferromagnéticas.

En el caso de estas partículas, al ser del tamaño micrométrico, esta imanación espontánea no tiene la misma orientación a lo largo de todo el volumen, sino que aparecen dentro de cada partícula distintas regiones denominadas dominios magnéticos que presentan orientaciones de la imanación diferentes los unos de los otros, haciendo que, en promedio y sin campo aplicado externo, la imanación pueda ser nula.

Por lo tanto, inicialmente cuando no existe un campo magnético aplicado, las partículas se encuentran suspendidas en el solvente distribuidas de manera aleatoria y más o menos uniforme. Esta situación se puede observar en la figura 2.1.

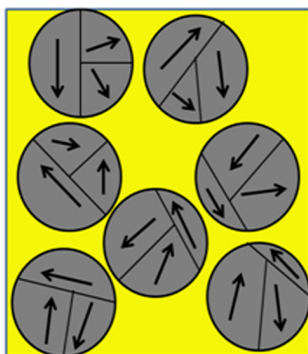


Figura 2.1. Esquema de las partículas de hierro (gris) suspendidas en un solvente (amarillo). Al no haber campo magnético aplicado y ser partículas de tamaño micrométrico, dentro de cada partícula se pueden observar dominios, cada uno de los cuales presenta una determinada orientación de la imanación.

Ahora bien, si a un material ferromagnético se le aplica un campo magnético intenso con una orientación determinada, los dominios van a tender a alinearse en dicha dirección, de modo que los dominios que están orientados en el mismo sentido y dirección que el campo magnético aplicado aumentan su tamaño dando lugar finalmente a la aparición de un monodominio. Este comportamiento en nuestro fluido se traduce en que cada partícula se va a poder considerar como un dipolo magnético cuya orientación, al estar suspendidos en un fluido, coincidirá además con la del campo magnético aplicado. Esta situación está esquematizada en la figura 2.2.

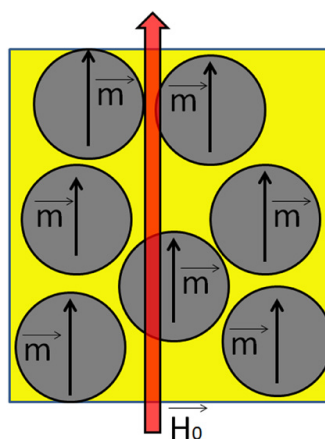


Figura 2.2. Al aplicar el campo magnético (flecha roja), los dominios de las partículas se orientan dando lugar a un monodominio cuya imanación, al estar en un fluido, está orientada también en la dirección del campo magnético. En este esquema, se supone que el campo es uniforme y no se tiene en cuenta la interacción entre partículas, de ahí, que no se muestre una organización en cadenas.

Si se considerase que el campo aplicado es no uniforme y/o se tuviera en cuenta la interacción entre dipolos, las partículas formarían estructuras similares a cadenas o estructuras más complejas. Este proceso no se muestra en la figura 2.2, pero se tendrá en cuenta y se explicará más adelante.

El momento magnético que se induce en cada partícula cuando se aplica un campo magnético uniforme y unidireccional, \vec{H}_0 , tomará el siguiente valor en la dirección paralela al campo magnético aplicado:

$$\vec{m} = \frac{4}{3} \pi a^3 \vec{M} \quad (2.1)$$

donde a es el radio de la particular y \vec{M} la imanación, con

$$\vec{M} = \chi \vec{H}_0 \quad (2.2)$$

siendo χ la susceptibilidad magnética definida de la siguiente manera:

$$\chi = 3\Lambda = 3 \frac{\mu_s - \mu_f}{\mu_s + 2\mu_f} \quad (2.3)$$

donde Λ es el factor de contraste de la permeabilidad magnética, μ es la permeabilidad magnética relativa, y los subíndices s y f se refieren a la fase sólida y a la fase fluida respectivamente.

Esta primera interacción con el campo magnético no da lugar a un reordenamiento de las partículas, pues al ser un campo uniforme solo implicaría una rotación de las partículas, pero no una traslación de las mismas. Sin embargo, cuando se aplica un campo magnético sobre estos fluidos, se ha observado que realmente aparece un movimiento de dichas partículas y que se generan estructuras en forma de cadenas u otro tipo de estructuras. En una primera aproximación, estas formaciones se pueden explicar de manera diferente según el campo magnético aplicado sea uniforme o no.

2.1.1.1. Campo magnético uniforme

Si el campo magnético aplicado es uniforme, el movimiento de partículas se explica en función de las interacciones entre los dipolos (partículas) que se encuentran a una cierta distancia. Además, esos dipolos podrán formar cadenas, y la interacción cadena-dipolo y cadena-cadena también provoca un movimiento de las partículas.

2.1.1.1.1. Interacción dipolo-dipolo

Considerando cada partícula como un dipolo magnético puntual, la energía de interacción magnética entre dos dipolos \vec{m}_i y \vec{m}_j es:

$$U_{ij}^d = \frac{\mu_0 \mu_f}{4\pi r^3} \left[(\vec{m}_i \cdot \vec{m}_j) - 3(\vec{m}_i \cdot \hat{r})(\vec{m}_j \cdot \hat{r}) \right] \quad (2.4)$$

y la fuerza sobre la partícula j producida por la partícula i es

$$\vec{F}_{ij}^d = \frac{3\mu_0 \mu_f}{4\pi r^4} \left\{ \left[(\vec{m}_i \cdot \vec{m}_j) - 5(\vec{m}_i \cdot \hat{r})(\vec{m}_j \cdot \hat{r}) \right] \hat{r} + (\vec{m}_j \cdot \hat{r}) \vec{m}_i + (\vec{m}_i \cdot \hat{r}) \vec{m}_j \right\} \quad (2.5)$$

donde $\hat{r} = \vec{r} / r$ es un vector unidad paralelo a la línea que une las dos dipolos puntuales; $\vec{r} = \vec{r}_j - \vec{r}_i$, es el vector posición de la partícula j desde la posición de la partícula i , y μ_0 es la permeabilidad magnética del vacío.

Si suponemos que las partículas son idénticas, también lo serán los momentos dipolares magnéticos. Además suponemos que estos momentos dipolares tienen la misma dirección que el campo aplicado. En la figura 2.3 se puede ver un esquema de la situación que se presenta.

Con esta configuración, la energía y la fuerza de interacción entre dipolos quedan como sigue:

$$U_{ij}^d = \frac{\mu_0 \mu_f m^2}{4\pi r^3} (1 - 3 \cos^2 \theta) \quad (2.6)$$

$$F_{ij}^d = \frac{3\mu_0 \mu_f m^2}{4\pi r^4} \left[(1 - 3 \cos^2 \theta) \hat{r} - \sin(2\theta) \hat{\theta} \right] \quad (2.7)$$

siendo θ el ángulo entre el campo magnético aplicado, $\hat{\theta}$ el vector unitario, y \hat{r} el vector posición de la partícula j respecto a la posición de la partícula i .

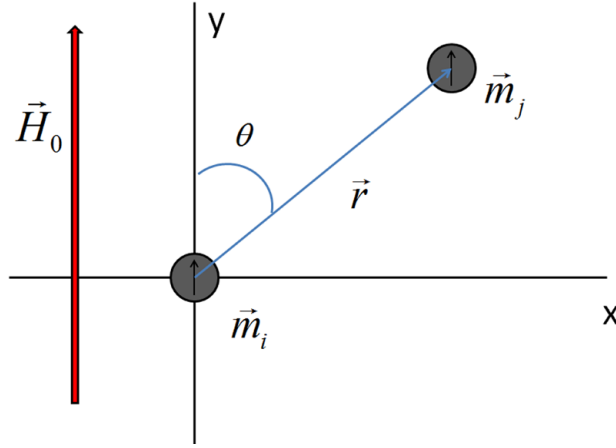


Figura 2.3. Esquema en el que se representa la presencia de dos dipolos (partículas) representadas por dos esferas grises, separados una distancia r , bajo la aplicación de un campo uniforme y unidireccional H_0 .

De la ecuación (2.7) se puede sacar la interesante conclusión de que la fuerza radial es atractiva, cuando

$$(1 - 3 \cos^2 \theta) \leq 0 \Rightarrow \frac{1}{\sqrt{3}} \leq \cos \theta \quad (2.8)$$

Por lo tanto, alrededor de cada partícula existe un cono de aproximadamente 55° en el cual cualquier partícula que esté dentro será atraída hacia el otro dipolo; mientras que, si está fuera de ese cono, la partícula se verá repelida. Por otra parte, la componente angular tiende a alinear la posición relativa de las partículas con la dirección del campo magnético aplicado.

A partir de estos resultados se puede inferir que, cuando se le aplica un campo magnético a los fluidos MR, las partículas van a tender a formar cadenas debido a que la fuerza radial tiende a juntar partículas separadas, mientras que la componente angular tiende a alinearlas con la dirección del campo magnético externo (Melle, 2002).

Una corrección a este efecto es la del campo local (Martin *et al.*, 1996). El campo magnético induce un momento dipolar en las partículas, de modo que la partícula j no sólo se

va a ver afectada por el campo externo aplicado, sino que a su vez, también se va a ver afectada por el campo magnético creado por el resto de los dipolos inducidos debido al efecto del campo externo sobre el resto de las partículas. Debido a la corrección de campo local, los dipolos pueden no estar perfectamente alineados en la dirección del campo magnético externo aplicado, sino que, dependiendo del ángulo que se forme entre el campo y el vector posición relativa de las partículas, pueden desplazarse ligeramente de la dirección del campo aplicado. Este ángulo puede variar entre 0 y 4 °. Además, la fuerza entre los dipolos también se puede ver afectada, de modo que el cono donde la fuerza es atractiva se puede ver modificado al igual que la fuerza angular que tiende a alinear el vector posición relativo entre partículas con el campo externo aplicado, viéndose incrementado tanto la extensión del cono atractivo como la fuerza.

2.1.1.1.2. Interacción lateral entre una cadena de partículas y una partícula aislada

A partir del cálculo de la energía entre una cadena finita cuyas partículas están alineadas con el campo magnético externo aplicado y una partícula aislada a una distancia determinada de la cadena (Melle, 2002), se puede observar que existe un valor de dicha distancia que define una zona de atracción de la partícula (cuando la distancia es menor a dicho valor) o la repulsión de la misma (cuando es mayor). Esta distancia límite aumenta, esto es, hay una mayor zona en la que la interacción es atractiva, cuando el número de partículas que forma la cadena se incrementa. Además, a partir del análisis de la energía potencial, se ve que con el aumento del número de partículas la barrera energética de repulsión disminuye.

Por lo tanto, se puede concluir que el aumento del número de partículas que forman una cadena favorece la atracción de otras partículas aisladas, pues aumenta la zona donde la interacción es atractiva y, además, facilita el proceso de crecimiento de la cadena al disminuir la barrera de potencial.

2.1.1.2. Campo magnético no uniforme

Si el campo magnético aplicado no es uniforme, quiere decir que existe un gradiente de campo, y, por lo tanto, implica la aparición de una fuerza que va a ser responsable del

movimiento de las partículas, dipolos magnéticos, hacia las zonas donde la intensidad de campo magnético es mayor. En este caso la interacción dipolo–campo sí provoca de forma directa el desplazamiento de las partículas. Igualmente, también tendrán lugar las interacciones entre partículas que vimos en el apartado anterior.

Con los volúmenes de fluido MR y fracciones de volumen de partículas que se usan en esta Tesis se puede llegar a trabajar con un número de partículas de entre 100 millones y 3000 millones; por lo que para tener una idea realista de lo que realmente ocurre en estos sistemas se deberían utilizar modelos numéricos como en algunos de los casos expuestos en el capítulo 1. Estos ejemplos aquí propuestos son simplemente una situación idealizada que permiten tener una idea intuitiva de lo que ocurre.

2.2. Propagación acústica en fluidos MR

En este apartado se presenta inicialmente una breve introducción sobre la propagación de radiación acústica a frecuencia ultrasónica. A continuación, se analizan los modelos teóricos que podrían describir la propagación acústica en medios cuya microestructura es similar a la encontrada en fluidos MR de acuerdo a la revisión bibliográfica realizada en el capítulo 1. La discusión de la validez de los resultados de estos modelos se realizará en el apartado de “resultados y discusión”, capítulo 4.

Estos modelos se van a presentar de manera esquemática para que puedan constituir una fuente de consulta rápida y clara. Para más detalles, se ofrecen las referencias bibliográficas donde se podrá encontrar un desarrollo mucho más pormenorizado de cada uno de ellos.

Los ultrasonidos son ondas mecánicas debidas a variaciones de presión que se propagan a través de medios compresibles, y cuya frecuencia es superior al rango de la audición en seres humanos (20Hz-20KHz). Estas excitaciones pueden ser de diferente naturaleza según se propaguen en un volumen (ondas longitudinales y transversales), en una superficie (ondas de

Rayleigh), en una estructura tipo placa (ondas de Lamb, Love)... En esta Tesis se va a estudiar solamente la propagación de ondas longitudinales.

La propagación a través de un fluido o un sólido es diferente, pues, mientras que ambos medios pueden soportar excitaciones longitudinales, esto es, ondas cuya dirección de propagación coincide con la dirección del desplazamiento de las partículas que forman el medio por el paso de la excitación, los sólidos pueden soportar también ondas transversales en las que las vibraciones de las partículas se producen en la perpendicular a la dirección en la que se propaga la onda. Realmente, en los fluidos se propagan también ondas transversales, siendo este fenómeno más importante cuanto mayor viscosidad presente dicho fluido; sin embargo estas ondas son evanescentes, en el sentido de que se atenúan muy rápidamente, definiéndose la longitud de penetración, δ , como la longitud en la que la onda transversal disminuye su amplitud en un factor “e”. En la figura 2.4 se puede ver un esquema de las ondas longitudinales y transversales que se propagan en un medio.

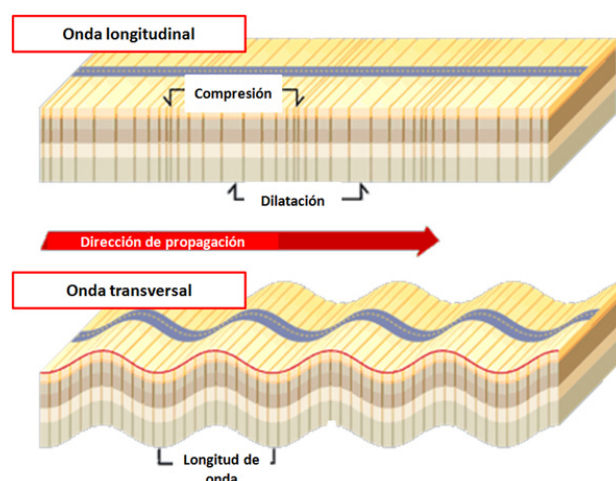


Figura 2.4. Esquema de ondas longitudinales y transversales que se propagan en un medio.

Dependiendo del medio en el que se propaguen, estas ondas acústicas quedan caracterizadas por una velocidad de propagación y una atenuación diferentes, puesto que ambas características dependen de las propiedades mecánicas y termodinámicas de dicho medio. Cuando se habla de velocidad de propagación se puede hablar de dos tipos de velocidades: la velocidad de fase y la velocidad de grupo. La velocidad de fase es la velocidad de propagación, c , de cada una de las fases por las que está compuesta una onda:

$$c = \frac{\omega}{k} = \lambda f \quad (2.9)$$

donde ω es la frecuencia angular, $k = 2\pi / \lambda$ es el vector de onda, λ es la longitud de la onda, y f la frecuencia de la misma.

La velocidad de grupo, sin embargo, se puede definir como la velocidad a la que se propaga la energía de la onda y responde a la siguiente expresión $c_g = \partial\omega / \partial k$.

Estas velocidades son iguales si el medio en el que se trabaja es no dispersivo, lo cual significa que la velocidad (cualquiera de ellas) no depende de la frecuencia; sin embargo, serán diferentes si la velocidad de propagación depende de la frecuencia. Para tener una idea intuitiva, se puede imaginar una onda como un conjunto de ondas de diferentes frecuencias que se suman para dar la onda resultante. Si el medio es dispersivo, cada componente frecuencial de la onda tiene una velocidad diferente y, por lo tanto, se adelantan o retrasan unas respecto a otras según se propagan en el medio. Esto hace que una misma onda en un medio dispersivo, cuando se observa a dos distancias diferentes, presente dos perfiles o formas diferentes.

En esta Tesis, cuando se utilice la expresión velocidad de propagación, siempre se estará haciendo referencia a la velocidad de propagación de fase de una onda longitudinal. Es usual designarla en acústica con la letra c , y así se hará en este trabajo.

2.2.1. Propagación en un fluido isótropo y homogéneo

En un fluido isótropo y homogéneo, si se resuelve la ecuación de propagación de una onda plana, se obtiene una relación sencilla entre la velocidad de propagación y las propiedades mecánicas:

$$c(T) = \frac{1}{\sqrt{\kappa\rho}} = \sqrt{\frac{K}{\rho}} \quad (2.10)$$

donde ρ es la densidad, κ es la compresibilidad adiabática, y K es el módulo de compresibilidad volumétrico. Esta ecuación se puede considerar que tiene validez general dentro de los rangos

de frecuencia (~ 1 MHz) y baja amplitud de señal utilizadas en este trabajo, siempre y cuando se conozcan la compresibilidad y la densidad efectiva del material (fluido, suspensión...) que se estudia. Estos parámetros son dependientes de la temperatura.

Para la atenuación en fluidos newtonianos y a bajas frecuencias la ley de Stokes proporciona el valor de la atenuación del sonido:

$$\alpha = \frac{2(\eta + \eta^v)\omega^2}{3\rho c^3} \quad (2.11)$$

donde η es la viscosidad dinámica y η^v es la viscosidad de volumen, ω es la frecuencia angular, ρ es la densidad y c es la velocidad de propagación en el medio.

Para medios no homogéneos, estas expresiones se complican considerablemente. A continuación analizaremos algunos de estos medios (suspensiones de partículas esféricas, suspensiones de fibras orientadas y materiales porosos), por su relevancia para el modelado de la propagación de ondas en fluidos MR.

2.2.2. Propagación en suspensiones de partículas esféricas en un solvente

Un fluido MR se puede considerar como una suspensión de partículas en un solvente cuando no hay un campo magnético aplicado. Estas suspensiones pueden tener una fracción de volumen variable, de hasta un 35% en nuestro caso. Por lo tanto, para predecir las propiedades acústicas de estos sistemas, se necesita un modelo de propagación acústico en suspensiones que sea válido para altas concentraciones de volumen.

Las suspensiones son sistemas muy comunes y que han sido estudiados ampliamente. Aun así, todavía es un campo cuyo conocimiento no está cerrado, sino que sigue siendo objeto de intensa investigación para comprender la física que está detrás de este sistema complejo. Los modelos teóricos de propagación acústica permiten caracterizar una suspensión a partir de las propiedades elásticas de los componentes y de su estructura.

Existen diferentes modos de propagación en suspensiones de partículas esféricas dependiendo del régimen de longitud de onda en el cual nos encontremos. En esta Tesis se ha trabajado con $\lambda \gg a$, donde a es el tamaño de partícula. En este régimen sólo aparece un modo de propagación longitudinal. Para otros rangos dependientes de la longitud de onda se pueden encontrar más detalles en la referencias (Ye *et al.*, 1993; Kytömaa, 1995).

Harker y Temple (Harker *et al.*, 1988) distinguen tres aproximaciones diferentes para estudiar la propagación del sonido en suspensiones y emulsiones. La más sencilla sería considerar desde un punto de vista cuasi fenomenológico que la velocidad de propagación toma un valor que dependerá de una densidad y compresibilidad efectiva del conjunto de la suspensión. El segundo tratamiento posible es el de la teoría de “scattering” o “multi-scattering”, siendo una de las técnicas más usadas para suspensiones de partículas esféricas. El último, consiste en utilizar las ecuaciones hidrodinámicas de balance de momento y continuidad de las fases, teniendo en cuenta el arrastre de una fase sobre la otra.

La aproximación fenomenológica cuenta como principal representante el trabajo de Urick (Urick, 1947; Urick, 1948). Sin embargo, con el paso del tiempo, varios autores han tenido en cuenta diferentes factores para mejorar estas predicciones, como puede ser el trabajo de Ament (Ament, 1953) que consideró el tamaño de partícula o el efecto de la viscosidad del fluido, o Jhonson y Plona (Johnson *et al.*, 1982) que tuvieron en cuenta, en el régimen de largas longitudes de onda, el efecto de la tortuosidad a través de la expresión de la velocidad de propagación del modelo de Biot para materiales porosos (Biot, 1956a).

Se han publicado numerosos trabajos sobre el “scattering” de una onda al incidir sobre una partícula suspendida en un fluido. Se considera que la partícula es una discontinuidad en el solvente, por lo que al incidir sobre ella una onda plana, ésta será reflejada, transmitida y dispersada por el obstáculo. Dicho obstáculo se considera como una esfera rígida y compresible cuando se trata de una suspensión. Autores como Epstein y Carhart (Epstein *et al.*, 1953), Urick y Ament (Urick *et al.*, 1949) o Allegra y Hawley (Allegra *et al.*, 1972) han desarrollado esta teoría. Dentro del mismo encuadre, pero teniendo en cuenta que a una partícula no sólo le incide una onda plana, sino también las ondas dispersadas por las otras partículas, se desarrolló

la teoría del “scattering” múltiple (Waterman *et al.*, 1961; Twersky, 1962) utilizada por otros autores como (Schwartz *et al.*, 1984) o Sayers (Sayers, 1980). Aparte de la complejidad matemática, especialmente para dispersores no esféricos, presentan el inconveniente de que para fracciones de volumen altas pierden mucha precisión.

Por último, se considera la aproximación de acoplamiento de fases en la que se utilizan las ecuaciones hidrodinámicas de momento y continuidad, así como la ecuación de ondas para un volumen de control. En dicho volumen las partículas están suspendidas en el fluido, pudiéndose considerar mucho más pequeño que la longitud de onda, pero suficientemente grande como para que haya un gran número de partículas en el mismo. Autores como Ahuja (Ahuja, 1973), Harker y Temple (Harker *et al.*, 1988) o Evans y Attenborough (Evans *et al.*, 1997) han publicado diversos trabajos utilizando este método. Esta aproximación es matemáticamente bastante sencilla y permite variar la forma y orientación de las partículas suspendidas.

En esta Tesis se han analizado los datos experimentales de velocidad y atenuación de las suspensiones utilizando el modelo de Urick y el modelo de Harker y Temple. El primero de ellos es el más básico y nos permitirá comparar una aproximación en el que, para la predicción de la velocidad, el tamaño de partícula o la viscosidad del fluido no son relevantes, frente a un modelo más complejo, como es el de Harker y Temple (HT) que sí tiene sensibilidad frente a estos parámetros. El modelo HT ha sido utilizado porque su rango de validez en fracción de volumen es hipotéticamente total, lo cual presenta una gran ventaja ya que la mayoría de los modelos de propagación en suspensiones suelen ser válidos solamente para suspensiones diluidas. Además, este modelo ya ha sido aplicado con éxito para estudiar la velocidad de propagación en otro tipo de suspensiones de partículas de hierro, aunque subestimaba la predicción de la atenuación (Schulitz *et al.*, 1998).

No se han utilizado modelos de “scattering”, ya que será preciso aplicar los modelos al caso de suspensiones de fibras o estructuras más complejas, las cuales no se pueden analizar de forma adecuada a través de dichos modelos.

2.2.2.1. Modelo de Urick

Es el enfoque más sencillo para calcular los parámetros de propagación de ultrasonidos en una suspensión. Es una aproximación cuasi fenomenológica en la cual la velocidad del medio depende de una densidad y una compresibilidad efectiva de los componentes, mientras que la atenuación es lineal con la fracción de volumen de partículas suspendidas (Urick, 1947; Urick, 1948; Tebbutt *et al.*, 1996).

Este modelo considera que:

- La velocidad de propagación es independiente de la frecuencia, del tamaño y forma de las partículas. Sin embargo, para el cálculo de la atenuación sí considera que las partículas son esféricas y de tamaño único.
- No hay “scattering” en el cálculo de la velocidad, mientras que sí se tiene en cuenta en la atenuación.
- Las partículas son pequeñas comparadas con la longitud de onda, $\lambda \gg a$.
- La suspensión se comporta como una solución ideal de las dos fases.
- No se tiene en cuenta la existencia de ningún proceso térmico.

Según este modelo,

$$c = \frac{1}{\sqrt{\rho_{eff} \kappa_{eff}}} \quad (2.12)$$

$$\rho_{eff} = \phi \rho_s + (1 - \phi) \rho_f \quad (2.13)$$

$$\kappa_{eff} = \phi \kappa_s + (1 - \phi) \kappa_f \quad (2.14)$$

$$\alpha = \frac{\phi}{2} \left\{ \frac{1}{3} k^4 a^3 + k \left(\frac{\rho_s}{\rho_f} - 1 \right)^2 \frac{36 n^2 a^2 (na + 1)}{\left[9(na + 1) \right]^2 + \left[4 \frac{\rho_s}{\rho_f} n^2 a^2 + 2 n^2 a^2 + 9 na \right]^2} \right\} \quad (2.15)$$

$$n = \frac{1}{\delta} = \left(\frac{\omega \rho_f}{2\eta} \right)^{1/2} \quad (2.16)$$

los subíndices s , y f , corresponden a los parámetros de la fase sólida y fluida respectivamente. ϕ es la fracción de volumen de sólido, a es el radio de la partícula, y n es la inversa de la longitud de penetración, δ .

2.2.2.2. Modelo Harker y Temple (HT)

Este modelo es una aproximación conocida como “acoplamiento de fases” en el que se considera que, para analizar el movimiento de la mezcla de dos fases, es necesario construir las cuatro ecuaciones diferenciales que lo gobiernan. Estas son: la ecuación de conservación de momento para la mezcla, dos ecuaciones de continuidad (una para cada fase) y la ecuación de arrastre de una fase sobre la otra (Harker *et al.*, 1988).

Las consideraciones de este modelo son las siguientes:

- Se supone que no hay efecto del campo gravitacional.
- No hay conducción térmica ni transferencia de masa entre las fases. Los efectos térmicos no son tenidos en consideración; este efecto tiene mayor relevancia cuando las densidades entre las dos fases son comparables (por ejemplo, en emulsiones)
- Las pérdidas por atenuación en el fluido se consideran mucho menores que la que se puedan producir por fuerzas viscosas entre las partículas y el fluido.
- No hay atenuación en la fase sólida.
- El fluido se considera que está alejado de cualquier frontera.
- Las partículas son consideradas esféricas y de un único tamaño.
- Se considera que no hay interacción entre partículas.

Por lo tanto según este modelo:

$$k^2 = \omega^2 \left[(1-\phi)\kappa_f + \phi\kappa_s \right] \left[\frac{\rho_f \left[\rho_s(1-\phi + \phi S) + \rho_f S(1-\phi) \right]}{\rho_s(1-\phi)^2 + \rho_f [S + \phi(1-\phi)]} \right] \quad (2.17)$$

$$S = N + iW \quad (2.18)$$

$$N = \frac{1}{2} \left(\frac{1+2\phi}{1-\phi} \right) + \frac{9}{4} \frac{\delta}{a} \quad (2.19)$$

$$W = \frac{9}{4} \left(\frac{\delta}{a} + \left(\frac{\delta}{a} \right)^2 \right) \quad (2.20)$$

De acuerdo a la expresión (2.16), la longitud de penetración δ depende de la viscosidad del fluido que forma la suspensión; sin embargo, en este modelo se considera que la presencia de otras partículas influye en la viscosidad del medio por lo que se trabaja con una viscosidad efectiva. Así Vand (Vand, 1948a; Vand, 1948b; Vand, 1948c) obtuvo para esferas:

$$\eta_{eff} = \eta \left(1 + 2.5\phi + 7.349\phi^2 + \dots \right) \quad (2.21)$$

Esta expresión permite tener en cuenta el efecto de las partículas en la viscosidad del fluido real siendo función de la fracción de volumen del sólido así como de la viscosidad del fluido. La geometría de las partículas afecta a los coeficientes que acompañan a las potencias de la fracción de volumen.

A partir de la expresión del vector de onda complejo, ecuación (2.17), se puede obtener la expresión de la velocidad de propagación y de la atenuación en el fluido.

$$c = \text{Re} \left(\frac{\omega}{k} \right) \quad (2.22)$$

$$\alpha = \text{Im}(k) \quad (2.23)$$

2.2.3. Propagación en suspensiones de fibras. Modelo de Ahuja

El modelo de Ahuja (Ahuja *et al.*, 1978) es un modelo de “acoplamiento de fases”, como el modelo HT, desarrollado para describir la velocidad de propagación y la atenuación de una suspensión de partículas cuya forma y orientación pueda ser variada sin necesidad de que las partículas sean esféricas. Para ello, se considera que, al incidir una onda plana sobre una partícula en suspensión ésta oscilará, se contraerá y se expandirá por efecto de la onda. Este

modelo tiene en cuenta la ecuación de la fuerza de arrastre a la que se ve sometida la partícula, la ecuación de continuidad y la ecuación de conservación de momento. Por último, resolviendo la ecuación de onda para este medio, se pueden obtener las propiedades acústicas del mismo. Se considera que el volumen sobre el que se aplican estas ecuaciones debe de ser lo suficientemente grande para que haya un gran número de partículas, pero, a la vez, lo suficientemente pequeño para que sea menor que la longitud de onda, y así poder considerar dicho volumen de suspensión como un medio homogéneo.

Con este modelo, las inclusiones pueden estar orientadas paralelas o perpendiculares al campo acústico y las partículas pueden ser esferoides, lenticulares u oblongas, cuyos límites son una esfera, un disco y un cilindro.

Este modelo se va a utilizar para la predicción de las propiedades acústicas de fluidos MR de baja fracción de volumen (0.01 y 0.03) cuando se aplica un campo magnético. La descripción de la estructura es similar a una suspensión de fibras en un fluido.

De acuerdo con el trabajo de Ahuja (Ahuja *et al.*, 1978), las consideraciones que se deben tener en cuenta son:

- Este modelo es válido para disoluciones diluidas.
- No se consideran ni efectos relacionados con conducción térmica ni con fenómenos de relajación.

Las expresiones para la velocidad de propagación y la atenuación según este modelo son las siguientes:

$$c = c_f \left[1 + \frac{1}{2} \phi \left(1 - \frac{\kappa_s}{\kappa_f} \right) - \frac{1}{2} \phi \left[\frac{\left(\frac{\rho_s}{\rho_f} - 1 \right) \left[\frac{\rho_s}{\rho_f} + \Gamma \right] (\Gamma + 1) + \sigma^2}{\left(\frac{\rho_s}{\rho_f} + \Gamma \right)^2 + \sigma^2} \right] \right] \quad (2.24)$$

$$\sigma = \frac{9}{4} \left(\frac{\delta}{b} \right) F^2 \left(1 + \left(\frac{1}{F} \right) \left(\frac{\delta}{a} \right) \right) \quad (2.25)$$

$$\Gamma = L + \frac{9}{4} \left(\frac{\delta}{b} \right) F^2 \quad (2.26)$$

$$\alpha = \frac{1}{2} \phi \left(\frac{\omega}{c_f} \right) \frac{\left(\frac{\rho_s}{\rho_f} - 1 \right)^2 s}{\left(\frac{\rho_s}{\rho_f} + \tau \right)^2 + s^2} \quad (2.27)$$

donde δ responde a la ecuación (2.16), los parámetros σ y Γ son los que tienen cuenta la forma y orientación de las partículas a partir de los factores de forma F y los coeficientes de inercia L . a y b son los semiejes menores y mayor de las partículas, siendo iguales para el caso de la esfera.

El factor de forma F para agujas cilíndricas cuyo extremo se mueve paralelo al campo acústico, siendo $h = b / a$, se expresa como:

$$F \cong \frac{2h}{3(\ln(2h) - 0.5)} \quad (2.28)$$

mientras que el coeficiente de inercia L para este caso es:

$$L = \frac{\varpi'}{2 - \varpi'} \quad (2.29)$$

donde $\varpi' \rightarrow 2(a/b)^2 [\ln(2b/a) - 1]$.

El factor de forma F para agujas cilíndricas cuyo extremo se mueve perpendicular al campo acústico, siendo $h = b / a$, se expresa como:

$$F \cong \frac{4h}{3(\ln(2h) + 0.5)} \quad (2.30)$$

y el coeficiente de inercia L para este caso es:

$$L = \frac{\varpi}{2 - \varpi} \quad (2.31)$$

siendo $\varpi \rightarrow 1 - (a/b)^2 [\ln(2b/a)]$.

2.2.4. Propagación en un material poroso

Un material poroso es un medio multifásico, formado al menos por una fase sólida y otra fluida y, dependiendo de su porosidad, puede pasar de ser desde un material básicamente sólido a prácticamente una suspensión. Además, las interconexiones que puede haber dentro del sólido suelen ser irregulares y, por lo tanto, también los poros presentes en su interior, pudiendo estar la estructura más o menos consolidada. Todo esto hace que el modelado de este tipo de medios sea tan complejo. Sin embargo, estos materiales aparecen de manera abundante en la naturaleza en rocas, sedimentos marinos, tejidos, cementos, huesos...

Algunas de las fotografías tomadas de nuestras muestras nos sugieren que la microestructura que presentan los fluidos MR para altas fracciones de volumen y campo magnético aplicado es similar a la de materiales porosos como los huesos. Sin embargo, estos fluidos MR presentan la característica de que, para que el material tenga apariencia porosa, no se necesita que la fracción de volumen sea muy elevada, pues el campo magnético aplicado permite que las partículas sólidas interacciones entre sí, dando lugar a un complejo entramado.

Al igual que ocurre en el caso de las suspensiones, en la bibliografía se describen las propiedades elásticas de materiales porosos (composites, cementos, huesos...) utilizando diferentes aproximaciones. En esta Tesis se van a utilizar tres modelos distintos con objeto de obtener información de las características estructurales y elásticas de los fluidos MR concentrados bajo la acción de un campo magnético.

El modelo de Biot isótropo sin consideraciones de disipación viscosas constituye una primera aproximación al problema (Biot, 1956b). La ausencia de datos bibliográficos sobre las características del material MR bajo la acción del campo magnético dificulta el análisis y el cálculo de los parámetros que maneja dicho modelo, lo cual no ocurre en otros casos como huesos o tejidos, ampliamente estudiados en la bibliografía. Hay que indicar, por otro lado, que

el modelo de Biot también ha sido utilizado para predecir las propiedades acústicas para un fluido ER (Wicker *et al.*, 2002).

De manera similar se va a utilizar el modelo micromecánico bifásico de Jeong (Jeong *et al.*, 1996) para tratar de obtener información de la microestructura de los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético y para altas fracciones de volumen, ya que nos permite incluir de manera más simple que el de Biot algunas de las características anisótropas del material.

Teniendo en cuenta los resultados cualitativos obtenidos mediante los dos modelos propuestos anteriormente, se ha modificado el modelo de Reuss y Voigt para describir las velocidades de propagación en estos fluidos MR. Como se ha visto en la introducción, el hecho de que no haya muchos trabajos sobre la propagación del sonido en fluidos MR hace inviable la comparación de resultados con la literatura.

Los modelos mencionados se han utilizado para el cálculo de la velocidad de propagación de una onda en el medio. No se presentará el modelo de Biot para el cálculo de la atenuación, pues se requeriría el conocimiento de más parámetros que no son medibles. Por otro lado, no son conocidos modelos como el de Reuss y Voigt para la atenuación y modelos, como el micromecánico bifásico, están desarrollados para las velocidades de propagación.

2.2.4.1. Modelo de Biot

Este modelo, aplicado entre otros casos al estudio de huesos, considera la propagación en un material poroso saturado de fluido (Williams, 1992). El caso más simple, y por lo general más utilizado, es el de un material macroscópicamente homogéneo e isotrópico saturado de un fluido no viscoso (Biot, 1956a; Biot, 1956b). En este caso se requiere el conocimiento de siete parámetros de los cuales algunos pueden ser fácilmente medibles, mientras que otros son difíciles de obtener. Este caso se suele usar como una primera aproximación al problema. Si es preciso añadir anisotropía y disipación por viscosidad, el modelo se complica y precisa aún de más parámetros para desarrollar los cálculos (Biot, 1962; Sharma *et al.*, 1991). Bajo las condiciones del caso más simple, muchos autores (Williams, 1992; Haire *et al.*, 1999; Wear *et al.*, 2005) han conseguido describir la velocidad de propagación en estos medios de manera

satisfactoria pese a la restricción de no aplicar la anisotropía ni el efecto de la viscosidad, aunque siempre la atenuación presenta discrepancias significativas respecto a los resultados experimentales (Pakula *et al.*, 2008). Dado que los huesos, por lo general son anisótropos, algunos autores han intentado incluir dicha anisotropía afectando tan solo a un parámetro que tiene en cuenta, en cierto modo, la forma de la estructura porosa y que se denomina tortuosidad (Hughes *et al.*, 2007; Aygun *et al.*, 2009).

En general, en estos tipos de medios, se pueden propagar tres ondas diferentes: dos longitudinales, denominadas rápida y lenta, y una transversal. Existe un factor denominado frecuencia crítica, $\omega_c = 2\eta / \rho_f a_{po}^2$, donde a_{po} es el tamaño del poro, el cual separa el comportamiento del sistema en dos regiones de frecuencia. Para bajas frecuencias (Biot, 1956a), valores de frecuencia por debajo de la frecuencia crítica, la atenuación tiene un efecto importante sobre la velocidad de la propagación haciendo que se propaguen un modo longitudinal rápido y un modo transversal, siendo el modo longitudinal lento evanescente. Sin embargo, para frecuencias mayores que la crítica, la longitud de penetración viscosa es menor que el tamaño de poro, el efecto de la viscosidad no se tienen en cuenta, y se podrían apreciar los tres modos de propagación siempre que el material estuviese consolidado (Biot, 1956b).

En este apartado se describen las ecuaciones del modelo de Biot isótropo para el caso de frecuencias altas, que corresponde a las condiciones experimentales analizadas (la longitud de penetración estimada es de unas $15 \mu m$), tanto si el material está consolidado como si no (Johnson *et al.*, 1982; Williams, 1992).

Para aplicar el modelo de Biot a nuestro caso se considera que:

- Los poros están interconectados.
- El rozamiento entre ambas fases da lugar a pérdidas de origen viscoso.
- El tamaño de poro medio debe de ser menor que la longitud de onda (así el “scattering” puede ser despreciado).
- El medio es infinito.
- El esqueleto que forma el material poroso es homogéneo.

Las propiedades acústicas son obtenidas a partir de un número limitado de parámetros macroscópicos de la fase sólida, de la fase fluida y del esqueleto o estructura que forma el sólido interconectado (cuyos parámetros toman valores diferentes a los del sólido). De estos parámetros, algunos son conocidos, otros medibles y otros difíciles de conocer. Dentro de este último grupo se encuentran, en especial, los parámetros elásticos, la tortuosidad y la permeabilidad que describen la estructura del medio.

Un inconveniente de este modelo es que, al no ser conocidos los parámetros de la estructura formada, existen parámetros de ajuste, por lo que, si no hay bibliografía para comparar, se hace complicado aseverar si los resultados son correctos o no.

En este trabajo no se presenta la velocidad transversal, pues no es de nuestro interés. Además, siempre nos encontramos en el límite de frecuencias altas. Para estas condiciones se presentan las siguientes ecuaciones para las velocidades longitudinales.

$$c^2 = \frac{\Upsilon \pm \left[\Upsilon^2 - 4(\rho_{11}\rho_{22} - \rho_{12}^2)(PR - Q^2) \right]^{1/2}}{2(\rho_{11}\rho_{22} - \rho_{12}^2)} \quad (2.32)$$

$$\Upsilon = P\rho_{22} + R\rho_{11} - 2\rho_{12}Q \quad (2.33)$$

$$P = \frac{(1-\beta)\left(1-\beta-\frac{K_b}{K_s}\right)K_s + \beta\frac{K_s}{K_f}K_b}{1-\beta-\frac{K_b}{K_s} + \beta\frac{K_s}{K_f}} + \frac{4}{3}\mu_b \quad (2.34)$$

$$Q = \frac{\left(1-\beta-\frac{K_b}{K_s}\right)\beta K_s}{1-\beta-\frac{K_b}{K_s} + \beta\frac{K_s}{K_f}} \quad (2.35)$$

$$R = \frac{\beta^2 K_s}{1-\beta-\frac{K_b}{K_s} + \beta\frac{K_s}{K_f}} \quad (2.36)$$

$$\rho_{11} + \rho_{12} = (1-\beta)\rho_s \quad (2.37)$$

$$\rho_{22} + \rho_{12} = \beta \rho_f \quad (2.38)$$

$$\rho_{12} = (1 - \Omega) \beta \rho_f \quad (2.39)$$

En estas ecuaciones, los subíndices s , f , y b corresponden a los parámetros de la fase sólida, de la fase fluida y de la estructura porosa que se forma. $\beta = 1 - \phi$ es la porosidad del medio; K viene definido por la ecuación (2.10); μ es el módulo de cizalla y Ω es la tortuosidad, parámetro geométrico que define cómo de irregular es un recorrido. La tortuosidad se puede considerar también como un parámetro que está relacionado con el acoplamiento del movimiento entre la fase sólida y fluida (Johnson *et al.*, 1982). Los términos ρ_{11} , ρ_{12} y ρ_{22} se entienden como coeficientes inerciales de arrastre.

Como se ha dicho, en muchos casos los valores de la estructura formada no son conocidos o no es posible medirlos, aunque se han derivado algunas expresiones que las relacionan con los parámetros del sólido. En nuestro caso no hay expresiones obtenidas para el cálculo de los parámetros elásticos del esqueleto ni para la tortuosidad; sin embargo, se van a aplicar unas expresiones comúnmente utilizadas para materiales óseos (Williams, 1992; Haire *et al.*, 1999):

$$E_b = E_s (1 - \beta)^m \quad (2.40)$$

$$K_b = \frac{E_b}{3(1 - 2\nu_b)} \quad (2.41)$$

$$\mu_b = \frac{E_b}{2(1 + \nu_b)} \quad (2.42)$$

$$\Omega = 1 - s \left(1 - \frac{1}{\beta} \right) \quad (2.43)$$

donde E es el módulo de Young, ν es el coeficiente de Poisson y m y s son parámetros ajustables.

Un resultado interesante surge cuando se cumple que $K_b = \mu_b = 0$. Esto corresponde a un material poroso en el que las partículas no están consolidadas. No existe propagación de una velocidad transversal y, además, la ecuación (2.32) se convierte en:

$$c^2 = \left(\frac{1-\beta}{K_s} + \frac{\beta}{K_f} \right)^{-1} \left[\frac{\beta(1-\beta)\rho_s + (\Omega - 2\beta + \beta^2)\rho_f}{\Omega\rho_f \left[(1-\beta)\rho_s + (1-\Omega^{-1})\beta\rho_f \right]} \right] \quad (2.44)$$

Si además se cumple que $\Omega \rightarrow \infty$, habrá un acoplamiento perfecto entre el movimiento de la fase sólida y la fase fluida, y, por lo tanto, la ecuación (2.44) se convierte en la llamada fórmula de Wood que es completamente equivalente a la que representa el modelo de Urick, ecuación (2.12).

2.2.4.2. Modelo micromecánico bifásico para la velocidad de propagación

La aplicación de modelos multifásicos para describir las propiedades elásticas de los materiales basados en cemento se puede dividir en dos grandes grupos según (González Hernández, 2002). El primer grupo no considera la microestructura y supone que el esfuerzo o la deformación es igual en las fases que forman el compuesto. Dentro de este grupo se encontrarían los modelos de Reuss y Voigt (Voigt, 1928; Reuss, 1929), del cual se hablará más adelante, el de Hirsch-Dougill (Metha *et al.*, 1993) o el de Popovics (Baalbaki *et al.*, 1992). Estos modelos presentan una formulación relativamente sencilla, pero obvian la complejidad de la microestructura. El segundo grupo corresponde a modelos que sí tienen en cuenta características microestructurales de las fases constituyentes, considerando el material compuesto formado por una matriz e inclusiones. Dentro de estos modelos destacamos los modelos micromecánicos.

La micromecánica no es más que la extensión de la mecánica del sólido deformable a la microestructura de los materiales compuestos. Aunque estos modelos son más complejos, permiten obtener información de las propiedades elásticas, del tamaño, de la orientación y de la distribución de las fases constituyentes del medio compuesto. Dentro de esta clasificación

podemos mencionar los modelos de la inclusión simple y doble (Yang *et al.*, 1996; Yang, 1997) o el modelo micromecánico bifásico de Jeong (Jeong *et al.*, 1996).

El modelo micromecánico bifásico permite establecer una relación entre la velocidad ultrasónica y la microestructura del compuesto poroso. Está basado en la teoría de Mori-Tanaka (Mori *et al.*, 1973). Para ello, se considera el material poroso como un medio formado por una matriz homogénea y un gran número de inclusiones elipsoidales, caracterizado por una densidad efectiva y unas propiedades elásticas que se ven afectadas por la presencia de dichas inclusiones. El grado de cambio en estas propiedades dependerá, por tanto, de la fracción de volumen, de la forma, del tamaño y de la orientación de las inclusiones, así como de sus propiedades elásticas.

Las constantes elásticas de un compuesto están relacionadas de manera general con la velocidad longitudinal, c , de la siguiente manera:

$$c = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho_{eff}}} \quad (2.45)$$

donde C_{11} es la constante elástica del medio y ρ la densidad efectiva, ecuación (2.13).

El modelo micromecánico bifásico nos proporciona una expresión de las propiedades elásticas efectivas, y, por lo tanto, de las constantes elásticas, que relaciona el esfuerzo promedio y la deformación promedio del sistema. El tensor de constantes elásticas efectivas, ecuación (2.46), es expresado en términos del tensor de constantes elásticas de las fases que forman el compuesto y por características microestructurales de las inclusiones:

$$C = C^m + \phi(C^i - C^m)\langle T \rangle[(1-\phi)I + \phi\langle T \rangle]^{-1} \quad (2.46)$$

donde C^m y C^i son los tensores de las constantes elásticas de la matriz y de la inclusión, respectivamente. T es el tensor de Wu, un tensor de cuarto rango que tiene en cuenta la forma, el tamaño, la distribución y la orientación de las inclusiones. I es el tensor identidad y los paréntesis angulares, $\langle \rangle$, denotan el promedio de las orientaciones de las inclusiones sobre las orientaciones posibles.

Si suponemos que tanto el material como las inclusiones son isotrópicas, el tensor C se reduce a sólo dos constantes elásticas independientes, C_{11} y C_{44} , en notación reducida, donde:

$$C_{11} = C_{11}^m + \frac{\phi \left[C_{11}^i - C_{11}^m - \frac{4}{3} (C_{44}^i - C_{44}^m) \right] (\langle T_{1111} \rangle + 2 \langle T_{1122} \rangle)}{(1-\phi) + \phi (\langle T_{1111} \rangle + 2 \langle T_{1122} \rangle)} + \frac{\frac{8}{3} \phi (C_{44}^i - C_{44}^m) \langle T_{1212} \rangle}{(1-\phi) + 2\phi \langle T_{1212} \rangle} \quad (2.47)$$

Las expresiones del tensor de Wu, T , se pueden consultar de manera muy detallada en la referencia Tesis de González Hernández (González Hernández, 2002).

Este modelo asume que la matriz y las inclusiones son isotrópicas, es decir, que las propiedades toman los mismos valores independientemente de la dirección que se estudie. Además, aunque las inclusiones tienen la misma geometría, presentan anisotropía de forma y están orientadas aleatoriamente, por lo que sus propiedades globales pueden ser consideradas isotrópicas. Esta condición hará que las conclusiones que se saquen al describir nuestro medio se consideren como una aproximación y no como una descripción objetiva.

2.2.4.3. Modelo Reuss y Voigt modificado

Los modelos de Reuss y Voigt son modelos multifásicos sencillos para describir las propiedades elásticas de materiales compuestos. De hecho, sus valores se consideran como las fronteras más generales de los módulos elásticos de un material compuesto (Hill, 1952; Hill, 1963). Son modelos que no tienen en cuenta la microestructura, es decir, que no consideran ni la geometría ni la distribución de las inclusiones. Tiene como objetivo determinar el comportamiento elástico del material compuesto a partir de las características elásticas de los componentes, de sus fracciones de volumen y de su ordenamiento. Además, suponen que el esfuerzo o deformación aplicados son iguales en cada una de las fases. Estos modelos no van a ser utilizados directamente, sino como parte de un modelo algo más complejo que se detalla a continuación.

En el modelo de Reuss se supone que las fases están dispuestas en serie y bajo un esfuerzo uniforme, mientras que en el modelo de Voigt se supone que las fases están

distribuidas en paralelo y bajo una deformación uniforme. En la figura 2.5 se puede ver un esquema.

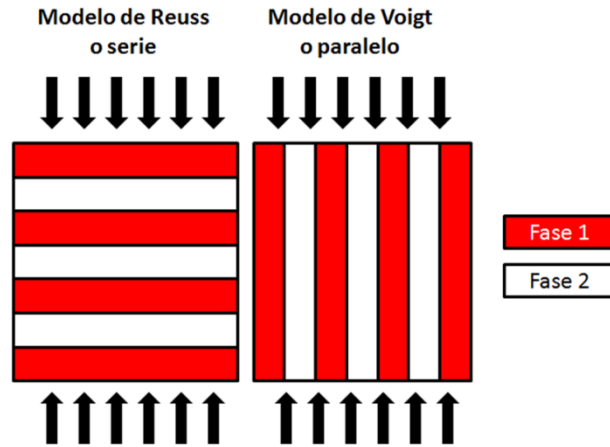


Figura 2.5. Modelo de Reuss y Voigt. Cada rectángulo de un color diferente indica una fase, mientras que las flechas negras son el esfuerzo uniforme aplicado.

La compresibilidad del compuesto según el modelo de Reuss (Reuss, 1929) tiene como expresión:

$$\kappa_r = \phi \kappa_s + (1 - \phi) \kappa_f \quad (2.48)$$

Si se compara esta expresión con la compresibilidad efectiva del modelo de Urick, ecuación (2.14), se observa que tienen la misma forma. Esto indica que ambas contribuciones, ya sean partículas en una suspensión, ya sean partículas que se encuentran “en serie”, contribuyen de la misma manera a la compresibilidad efectiva. Al ser un modelo unidimensional, el hecho de que estén orientadas en la dirección perpendicular a la propagación acústica no implica variación alguna en la misma. Esto es debido a que en este modelo no se tiene en cuenta qué ocurre en esa dirección perpendicular.

Por otro lado, la compresibilidad para el compuesto según el modelo de Voigt (Voigt, 1928), el cual sería aplicable a estructuras fibrosas paralelas a la propagación de la onda es:

$$\frac{1}{\kappa_v} = \frac{\phi}{\kappa_s} + \frac{1 - \phi}{\kappa_f} \quad (2.49)$$

Para describir las estructuras formadas en los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético, se pretende modelar el sistema como si fuese una suspensión de partículas en la que además existen estructuras sólidas paralelas y perpendiculares al campo acústico aplicado. Las contribuciones de las estructuras paralelas y/o perpendiculares serán mayores o menores según la fracción de volumen del sólido. El efecto de dichas contribuciones ya había sido tenido en cuenta con anterioridad (Mohebi *et al.*, 1996).

En esta Tesis, consideraremos que la unión de dos partículas orientadas debido a la aplicación del campo magnético no da lugar a una fibra unida perfectamente, sino que va a ser equivalente a que, de las dos partículas, sólo la parte que está en contacto va a contribuir a formar parte de la estructura fibrosa (modelo de Voigt), mientras que el resto de la partícula va a contribuir a la suspensión, con la dependencia funcional correspondiente (modelo de Reuss).

Por lo tanto, en nuestro sistema tendremos estructuras fibrosas en paralelo -en el sentido de Voigt- con el resto del sistema que consiste en la suspensión de partículas y las estructuras fibrosas orientadas en la perpendicular al campo acústico. Estas estructuras fibrosas orientadas perpendicularmente se encuentran en serie -en el sentido de Reuss- con la suspensión. La contribución a la compresibilidad del sistema por parte de cada una de las diferentes estructuras y/o fases está promediada mediante la fracción de volumen de cada una de las estructuras y/o fases como indican las ecuaciones (2.52) y (2.53). Estas fracciones de volumen están relacionadas según se indica en las siguientes ecuaciones:

$$\phi_f + \phi = 1 \quad (2.50)$$

$$\phi = \psi_c + \phi^* \quad (2.51)$$

donde ϕ_f es la fracción de volumen del fluido, ϕ es la fracción de volumen del sólido, ψ_c es la fracción de volumen de sólido que está en contacto en la dirección del campo magnético aplicado, ϕ^* es el resto de la fracción de volumen de sólido, esto es, la que está en forma de suspensión y la que corresponde a las partículas que están en contacto fuera de la dirección del campo magnético. En la figura 2.6 se puede ver un esquema de las estructuras propuestas.

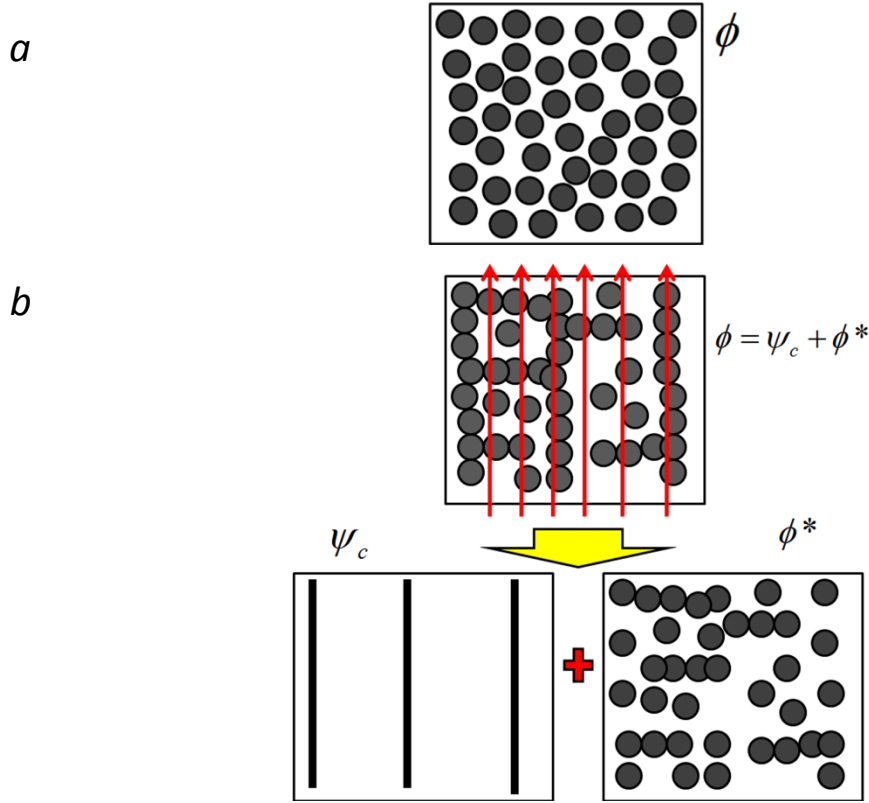


Figura 2.6. En la parte superior, (a), se representa el fluido MR como una suspensión. En la parte de abajo, (b), se aplica un campo magnético en la dirección de las flechas rojas, que en nuestros ensayos coincide con la dirección de la propagación acústica, provocando que las estructuras orientadas en la dirección del campo se encuentren en paralelo con el resto del sistema.

La expresión de la compresibilidad total del sistema se corresponde con las siguientes ecuaciones:

$$\frac{1}{\kappa_T} = \frac{\psi_c}{\kappa_s} + \frac{1-\psi_c}{\kappa_{sf*}} \quad (2.52)$$

$$\kappa_{sf*} = (\phi - \psi_c) \kappa_s + (1 - \phi) \kappa_f \quad (2.53)$$

donde κ_T es la compresibilidad total del sistema y κ_{sf*} es la compresibilidad de todas aquellas estructuras que no están alineadas con el campo acústico. Esta ecuación pone de manifiesto que la contribución de la parte sólida en suspensión y las estructuras que están alineadas fuera de la dirección de propagación de la onda sonora contribuyen de la misma manera, como si se encontrasen en serie –en el sentido de Reuss–.

Teniendo en cuenta las ecuaciones (2.50-2.53) y desarrollando para $\psi_c \ll 1$ se llega a:

$$\kappa_T = \kappa_0 \left[1 - \psi_c \left(\frac{(\kappa_s - \kappa_0)^2}{\kappa_s \kappa_0} \right) + 1 \right] \quad (2.54)$$

siendo κ_0 la expresión (2.14) que corresponde a la compresibilidad efectiva de una suspensión de partículas según Urick.

De esta expresión se observa que, cuando no hay campo magnético aplicado en la dirección de la propagación acústica, esto es, $\psi_c = 0$, el límite inferior para la compresibilidad es el de una suspensión.

Así pues, una vez conocida la compresibilidad efectiva dada por (2.54) y junto con (2.12) y (2.13) se obtiene una expresión para la velocidad de propagación del fluido MR.

2.3. Estabilidad. Proceso de sedimentación

En estos fluidos MR, un proceso muy común e importante es la desestabilización de la suspensión principalmente debido a la diferencia de densidades entre las partículas y el solvente. Sin embargo, hay otros factores que pueden afectar al comportamiento de la suspensión: la aparición de interacciones de tipo Van der Waals, las interacciones eléctricas por adquisición de cargas, la doble capa eléctrica, la adsorción de iones del medio, la presencia de impurezas y aire...

Este proceso de sedimentación se ve alterado si las partículas tienden a agregarse (floculación), pues formarán aglomerados de mayor tamaño, favoreciendo la sedimentación. Otro factor a tener en cuenta es la fracción de volumen de la suspensión; una fracción de volumen alta favorece la interacción entre partículas retardando la sedimentación.

En esta Tesis el objetivo no es estudiar en detalle el proceso de sedimentación en fluidos MR, sino mostrar que por medio de ultrasonidos se puede discernir entre que un fluido MR sea más estable o menos estable demostrando que los ultrasonidos son sensibles a este proceso.

Para ello, las propiedades acústicas principalmente deberán de ser sensibles a cambios en la fracción de volumen en una suspensión.

Este proceso de sedimentación es complejo y su estudio en detalle podría ser arduo. Sin embargo, para poder explicar de manera sencilla qué es lo que pasa cuando inicialmente tenemos un fluido homogéneo de color grisáceo y al cabo del tiempo vemos dos fases diferenciadas, vamos a presentar la expresión de la velocidad de sedimentación de una partícula en una suspensión libre. Esta expresión proporciona una idea intuitiva de lo que realmente puede estar pasando, teniendo siempre en mente que el proceso es más complejo.

Según la ley de Stokes (Lamb, 1994), la velocidad de sedimentación de una partícula esférica depende del radio de la partícula, a , de las densidades del solvente y de la partícula, ρ_f y ρ_s , de la viscosidad del solvente, η , y de la aceleración de la gravedad, g , de la siguiente manera:

$$v_{sed} = \frac{2a^2(\rho_s - \rho_f)g}{9\eta} \quad (2.55)$$

siendo menor la velocidad de sedimentación cuanto más pequeña sea la partícula, la viscosidad del solvente sea mayor y la diferencia de densidades entre el solvente y el fluido sea menor.

2.4. Reología de un fluido MR

La Reología es la Ciencia que estudia la deformación y flujo de materiales. Una cuestión fundamental en el estudio reológico de los fluidos MR es la determinación del esfuerzo umbral. Esta magnitud está directamente relacionada con el proceso de ruptura de la microestructura inducida por el campo magnético en presencia de esfuerzos de cizalla.

Se definen dos tipos de esfuerzo umbral, el estático y el dinámico. El esfuerzo umbral estático es el esfuerzo necesario para hacer fluir el material mientras que se define el esfuerzo umbral dinámico como el esfuerzo necesario para romper las estructuras en equilibrio durante el proceso de agregación/fragmentación. Estos esfuerzos umbrales pueden coincidir o no,

dependiendo de si se dan fenómenos de “shear banding”, tixotropía y/o deslizamiento en paredes.

Desde un punto de vista reológico, los fluidos MR se comportan esencialmente como fluidos newtonianos convencionales en ausencia de campo, mientras que en presencia del mismo pasan a comportarse como plásticos de Bingham (Bossis *et al.*, 2002; Melle, 2002; Claracq *et al.*, 2004; Olabi *et al.*, 2007; de Vicente *et al.*, 2011).

En un fluido newtoniano la viscosidad, η , no cambia si se modifica la velocidad de deformación, $\dot{\gamma}$, habiendo una respuesta lineal entre el esfuerzo de cizalla, τ , y la velocidad de deformación, $\dot{\gamma}$.

En un plástico de Bingham, sin embargo, es necesario sobrepasar un cierto esfuerzo umbral para que el material comience a fluir, siendo en este caso cuando se rompen las estructuras formadas en presencia del campo magnético. Este esfuerzo coincide con el esfuerzo umbral dinámico y depende del campo magnético aplicado, $\tau_y(H)$.

En la figura 2.7 se representan las curvas de flujo para los dos casos mostrándose cómo es el comportamiento.

Para un fluido newtoniano

$$\tau = \eta \dot{\gamma} \quad (2.56)$$

mientras que para un plástico de Bingham

$$\dot{\gamma} = 0 \quad \text{para } \tau < \tau_y \quad (2.57)$$

$$\tau = \tau_y(H) + \eta \dot{\gamma} \quad \text{para } \tau \geq \tau_y \quad (2.58)$$

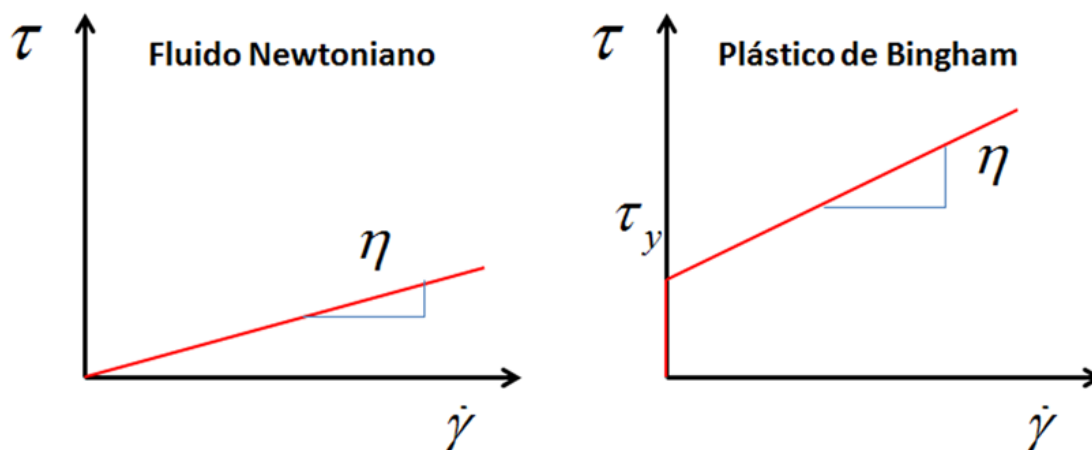


Figura 2.7. Curvas de flujo en las que se muestra la aplicación de un esfuerzo, τ , y la respuesta en velocidad de deformación, $\dot{\gamma}$, para dos fluidos con propiedades reológicas diferentes. τ_y es el esfuerzo umbral. A la izquierda se representa un fluido newtoniano y a la derecha un plástico de Bingham.

Tras esta breve introducción sobre los conceptos que se van a usar en esta Tesis, se pasa a detallar el modo de cálculo del esfuerzo umbral estático y dinámico desde un punto de vista reológico.

En primer lugar hay que tener presente que todos y cada uno de los puntos de la curva de flujo corresponderán a estados de equilibrio. Eso significa que la adquisición de las medidas se debe realizar durante un tiempo suficientemente largo como para garantizar dicha condición. Como regla general, la mínima velocidad de deformación ha de corresponderse con la inversa del tiempo empleado en la adquisición de los puntos.

De acuerdo con la definición hecha anteriormente, para conocer el valor del esfuerzo umbral estático basta con determinar qué esfuerzo provoca que la velocidad de deformación tome un valor no nulo. Para ello en primer lugar se establece un criterio para considerar que una velocidad de deformación sea distinta de cero; dependiendo del ensayo realizado se podría considerar que este valor sea 10^{-4} o 10^{-3} s^{-1} (de Vicente *et al.*, 2011). Para estimar el esfuerzo umbral estático se representa el esfuerzo de cizalla en escala logarítmica frente a la velocidad de deformación también en escala logarítmica, y a partir de la mínima velocidad de deformación que garantiza que los puntos de la curva están en equilibrio, se extrapola la tangente a la curva correspondiente al esfuerzo hacia la izquierda y se determina el corte con el

valor determinado como criterio que marca que la velocidad de deformación sea distinto de cero en abscisas. Ese corte corresponde al esfuerzo umbral estático.

Para realizar el cálculo del esfuerzo umbral dinámico se suele representar el esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble lineal. Para obtener el esfuerzo umbral dinámico basta con hacer un ajuste a la ecuación de Bingham en la zona de altas velocidades de deformación (generalmente entre 10 s^{-1} y 1000 s^{-1}). Obviamente, dependiendo del intervalo concreto de velocidades de deformación que se tome, el resultado del ajuste cambiará, por lo cual es necesario referir el esfuerzo obtenido al rango de velocidades de deformación utilizado para el cálculo.

Capítulo 3

Materiales y métodos

En este capítulo, en primer lugar se detallan los diferentes fluidos MR que se han utilizado a lo largo de todos los experimentos en esta Tesis: un fluido MR comercial (MRC) y tres fluidos no comerciales basados uno en aceite de silicona (MRNice), otro en aceite de oliva (MRaceite) y un último en Araldite (MRaraldite). Se muestran tanto sus componentes como el proceso de fabricación y preparación. En este apartado, igualmente, se indican los componentes y el proceso de fabricación de las muestras sólidas que han sido utilizadas para obtener las fotografías de la microestructura de los fluidos MR.

Posteriormente se describen los equipos utilizados y el proceso de medida para cada una de las diferentes técnicas experimentales, siendo éstas acústicas, magnéticas, ópticas y reológicas, así como el montaje empleado para estudiar el efecto de la temperatura sobre las propiedades mecánicas de los fluidos MR. En las técnicas acústicas se describe tanto el montaje experimental utilizado para medir las propiedades acústicas como los cálculos realizados para obtener las velocidades de fase, las atenuaciones de las señales y las incertidumbres de estas medidas.

En el apartado donde se detalla el montaje experimental magnético se describen las diferentes fuentes de campo magnético utilizadas.

Aunque el efecto de la temperatura ha sido estudiado por medio de medidas acústicas, se ha dedicado al mismo otro apartado, ya que el montaje experimental requerido es diferente. Además, conlleva un proceso de cálculo complejo con varias correcciones que se incluyen dentro de este apartado.

Las técnicas ópticas comprenden el montaje experimental para obtener las fotografías de las microestructuras de las muestras, y también el adaptado al reómetro para obtener las imágenes del ensayo tensión-deformación.

Por último, se describe el montaje experimental utilizado para realizar los ensayos reológicos que, además de la parte específicamente reológica, consta de los elementos ópticos citados en el párrafo anterior para estudiar la evolución de la microestructura mientras el fluido MR se somete al ensayo de tensión-deformación, así como de los instrumentos acústicos que aportan información complementaria al experimento reológico.

3.1. Materiales

Como se explicó detalladamente en la introducción, los fluidos MR son suspensiones de partículas magnéticas en un medio líquido. Aparte de esas dos fases, suele haber presente una tercera fase más, los aditivos, que ayudan a mejorar la estabilidad y permiten volver a dispersar los componentes tras el uso del fluido o tras un periodo largo de tiempo en el que se ha podido producir cierta sedimentación de las partículas. En esta Tesis se han utilizado tanto fluidos comerciales como no comerciales. Respecto al fluido MR comercial utilizado, se desconocen con exactitud sus componentes, ya que los fabricantes no proporcionan esta información, limitándose a dar una información genérica sobre los mismos. Sin embargo, este fluido es altamente estable y sus partículas pueden ser fácilmente dispersadas manteniendo sus propiedades durante largos periodos de tiempo. Además, los cambios en sus propiedades acústicas son muy evidentes al variar diversos factores, como la intensidad de campo aplicado o la temperatura. Como contrapartida, al no conocer sus componentes, no es posible estudiar con detalle diferentes factores, como el efecto de la fracción de volumen de partículas o la variación del solvente. Por esta razón hemos desarrollado fluidos MR propios. Estos últimos presentan el inconveniente de ser menos estables y no estar optimizados para su uso industrial. No obstante, ya que se conocen sus componentes con exactitud, es posible realizar un estudio sobre los factores comentados anteriormente.

3.1.1. MRC

El fluido MR comercial (MRHCCS4-A) suministrado por Liquid Research, de acuerdo con las especificaciones técnicas, está formado por partículas esféricas de hierro carbonilo con un tamaño entre 1 y 10 micras, siendo el líquido portador un aceite hidrocarburo no especificado. También hay presentes surfactantes que, igualmente, no son identificados, ni en cuanto a su naturaleza ni a su concentración. Sí es conocida la fracción de volumen de partículas presente, siendo ésta 0.20. Con este fluido se estudiarán propiedades como la estabilidad, el efecto de la temperatura, el efecto de la intensidad de campo magnético, la presencia de histéresis mecánica y la anisotropía.

Proceso de dispersión.

Este fluido comercial es estable y fácil de dispersar, por lo que su reutilización es factible obteniéndose resultados fiables. Para conseguir que las medidas se realicen en las condiciones más parecidas posibles se debe realizar siempre el mismo proceso de dispersión consistente en los siguientes pasos:

1. Se comienza agitando vigorosamente la muestra durante un minuto.
2. Se aplica un agitador giratorio (Cobos Vortex Mixer 250VM) a 3000 rpm durante 3 minutos.
3. Se aplica un transductor ultrasónico (Hielscher, UP200H) de potencia en contacto directo con el fluido trabajando a 90 W, con una frecuencia de 24kHz y una duración de la excitación de 0.5 ciclos, durante 2 minutos.
4. Finalmente, se introduce la muestra durante 4.5 minutos en una cámara de vacío consiguiendo que las burbujas producidas en los anteriores procesos sean expulsadas.

La muestra así tratada es introducida en una cámara a 30°C para lograr la estabilización térmica y estructural de la misma. Así se consigue una variación de $\pm 2\text{ns}$ en el tiempo de transmisión de un pulso ultrasónico que atraviesa la célula que contiene el MR, cuyo tiempo de vuelo es de unos 6 microsegundos, durante la siguiente hora de medida. Al ser una suspensión,

inevitablemente las partículas sedimentan lentamente con el tiempo, haciéndose evidente la separación de fases transcurrida una semana en reposo total.

Este fluido MRC ha sido utilizado al estudiar el proceso de sedimentación (apartado 4.2.1), el efecto de la temperatura (apartado 4.2.2), el efecto de la intensidad de campo (apartado 4.3.1), el efecto de histéresis (apartado 4.3.2), así como al estudiar el efecto de la anisotropía (apartado 4.3.3).

3.1.2. MRNice

Este es un fluido no comercial suministrado por el profesor Bossis del laboratorio de Física de la Materia Condensada (LPMC), CNRS, en Niza. Este fluido está formado por un 0.30 de partículas esféricas de hierro de alta pureza. El líquido portador es un aceite de Silicona 47v500 (Rhodorsil, VWR) y como aditivo se ha añadido estearato de aluminio. Este fluido será utilizado en los ensayos combinados de técnicas ultrasónicas, reológicas y ópticas.

Proceso de dispersión.

El proceso de dispersión de este fluido consiste en agitarlo continuamente y de manera vigorosa durante 6 minutos y dejarlo reposar durante 4 minutos. Dada la elevada viscosidad de este líquido no es posible utilizar los agitadores giratorios utilizados en otros casos. En estas circunstancias, también es muy poco efectivo utilizar agitación ultrasónica.

El fluido MRNice ha sido la muestra empleada para llevar a cabo la caracterización del proceso de ruptura de la microestructura mediante técnicas reológicas y acústicas (apartado 4.4).

3.1.3. MRaceite

Este fluido no comercial, sintetizado como parte del trabajo de esta Tesis, está formado por una concentración variable en fracción de volumen de partículas esféricas de hierro carbonilo con dimensiones entre 1 y 10 micras. La fracción de volumen es variada entre un 0.03 y un 0.35. El líquido en el que se encuentran suspendidas estas partículas está formado por un

91% en fracción de volumen de aceite de oliva virgen extra, 8.6% de grasa de litio (Comma) y un 0.4% de nanopartículas de sílice (BDH). La grasa de litio tiene por objeto aumentar la viscosidad y la densidad de la fase líquida, retrasando el proceso de sedimentación (de Vicente *et al.*, 2011). Por otro lado, las nanopartículas de silicio, actúan generando un gel al ser añadidas a un aceite (López-López, 2005). Con el paso del tiempo son adheridas (adsorbidas) a las partículas de hierro facilitando su dispersión. En ese mismo trabajo, se pone de relieve cómo, para altas fracciones de volumen, el efecto de añadir nanopartículas de silicio es mucho más eficaz que añadir otro tipo de surfactante, como el ácido oleico.

Estas proporciones han sido ajustadas para hacer estable, al menos durante una hora y sin campo magnético, una suspensión de partículas de hierro de un 0.20 de fracción de volumen en aceite de oliva. Se ha llegado a esta conclusión variando las proporciones de las diferentes fases y determinando de forma visual qué suspensión era más estable. Se han utilizado siempre estas proporciones de aceite, nanopartículas de silicio y grasa de litio para formar el fluido base. Con esta mezcla y sin más que variar la fracción en volumen de partículas de hierro añadidas, se puede estudiar el efecto de dicho parámetro sin la interferencia de la variación de otros componentes. Hay que resaltar que, aunque con estas proporciones no todos los líquidos resultantes están optimizados para ser estables durante largos periodos de tiempo, son estables durante aproximadamente una hora, que es tiempo suficiente para realizar los diferentes ensayos que posteriormente se van a mostrar.

Este fluido se ha utilizado para determinar la validez de los ultrasonidos en el estudio de la estabilidad, del efecto de la temperatura, del efecto de la fracción de volumen, del efecto de la intensidad de campo magnético y de la presencia de histéresis magnética en fluidos MR.

Proceso de preparación.

1. Se mezcla la grasa de litio con una pequeña parte del aceite de oliva que se vaya a utilizar, removiéndose con una espátula hasta disolver la grasa y lograr una mezcla homogénea.

2. Se añade el resto de aceite de oliva que corresponda y se vuelve a remover con ayuda de un agitador mecánico de hélice de pequeño tamaño hasta homogeneizar completamente la mezcla.
3. Se introduce durante 6 minutos en la cámara de vacío para eliminar las burbujas formadas.
4. En un recipiente aparte, se mezclan las partículas de hierro y las nanopartículas de silicio.
5. Una vez mezcladas, se añaden al líquido formado por el aceite de oliva y la grasa y se agita de nuevo. Esta vez se utiliza un agitador con hélices mayores durante 5 minutos formando una mezcla homogénea.
6. Finalmente, se introduce el fluido en la cámara de vacío durante unos 10 minutos extrayéndose la mayor parte de las burbujas.

Este líquido se introduce en la cámara termostática a 30°C para conseguir la estabilización térmica y estructural.

El fluido MRaceite ha sido utilizado como muestra para realizar el estudio del efecto de la fracción de volumen sobre las propiedades acústicas (apartado 4.1). Además, en concreto, el MRaceite con una fracción de volumen de partículas de 0.09 ha sido utilizado para estudiar el efecto de la sedimentación (apartado 4.2.1), el efecto de la intensidad de campo magnético aplicado (4.3.1), el efecto de histéresis (apartado 4.3.2) y el efecto de la anisotropía (apartado 4.3.3).

3.1.4. MRaraldite

Este fluido MR no comercial, desarrollado también como trabajo de esta Tesis, está formado por tan solo dos fases: partículas esféricas de hierro carbonilo con un diámetro entre 1 y 10 micras suministrado por BASF y Araldite DBF que es una resina epoxy (3M) como solvente. Este fluido tiene la ventaja de que su densidad y su viscosidad son mayores que la del aceite de oliva y es suficiente para crear suspensiones de partículas de hierro estables durante el proceso de medida. Por lo tanto, no es necesario introducir ningún tipo de surfactante. La fracción de

volumen de partículas utilizada varía entre 0.01 y 0.35. Este fluido se empleará para determinar la eficacia de los ultrasonidos en el estudio de la estabilidad, el efecto de la temperatura, el efecto de la fracción de volumen, el efecto de la intensidad de campo magnético y la presencia de histéresis magnética.

Proceso de preparación.

El proceso de preparación de este fluido es más sencillo que en los casos anteriores:

1. Se mezcla la fase sólida y la líquida y se remueve durante aproximadamente 10 minutos con una espátula, pues, al ser un líquido muy viscoso, los agitadores mecánicos de hélice no funcionan eficientemente.
2. Una vez removido y formada una mezcla con aspecto homogéneo, se introduce en la cámara de vacío durante 15 minutos para quitar las burbujas.

Una vez terminado este paso, se introduce la muestra en una cámara termostática a 30°C.

El fluido MRaraldite ha sido empleado de manera similar al MRaceite, así pues, ha sido usado como muestra para realizar el estudio del efecto de la fracción de volumen sobre las propiedades acústicas (apartado 4.1). En este caso, una fracción de volumen de partículas del 0.25 ha sido seleccionada con este solvente para estudiar el efecto de la sedimentación (apartado 4.2.1), el efecto de la temperatura (apartado 4.2.2), el efecto de la intensidad de campo magnético aplicado (4.3.1), el efecto de histéresis (apartado 4.3.2) y el de la anisotropía (apartado 4.3.3).

3.1.5. MRaraldite sólido

Cuando a la resina epoxi descrita en la sección anterior se le añade el entrecruzante o endurecedor, en este caso HY96 (3M), se convierte en una muestra totalmente sólida a temperatura ambiente tras un proceso de curado de aproximadamente un día. Además esta resina es transparente. Si se le sometiera a temperatura para un curado más rápido, disminuiría

la viscosidad durante una parte del mismo, lo que no es conveniente para los ensayos que se realizan. De esta forma, si se le añade el endurecedor al MRaraldite recientemente descrito, sin modificar las condiciones, se logra que la muestra solidifique “congelando” así la microestructura de la suspensión bajo las condiciones en las que se encuentre. Estas muestras sólidas se utilizan para realizar las fotografías de las diferentes microestructuras. De este modo, podemos tener una imagen bastante precisa de las estructuras que se forman en la suspensión de MRaraldite de la cual se medirán las propiedades acústicas. Esta metodología permite comparar medidas acústicas con imágenes de la microestructura. En este sentido, es importante destacar que, cuando se aplica el campo magnético, éste es el mismo en las dos situaciones. Para fabricar las muestras de MRaraldite sólido, la proporción usada de endurecedor es de un 20% en peso del Araldite, lo que supone una leve modificación en la fracción de volumen de hierro respecto a las muestras que no tienen endurecedor ($<2\%$), siendo ésta sin embargo, prácticamente igual para bajas concentraciones como al 0.01. En consecuencia, en la muestra sólida, el Araldite sigue siendo el componente predominante. Por otro lado, el efecto del endurecedor tarda hasta un día en completar del todo la polimerización, y a lo largo de varios minutos la muestra presenta prácticamente las mismas propiedades de viscosidad y densidad que durante las medidas acústicas. Es en este tiempo, cuando se aplica el campo magnético, no existe ningún impedimento para que se forme la estructura de partículas de la misma manera que en ausencia del endurecedor. Por todo ello, es lógico esperar que las estructuras formadas cuando solidifica el material sean similares a las formadas cuando el fluido es líquido.

Proceso de preparación.

Este proceso es similar al seguido anteriormente para hacer los fluidos formados por hierro y Araldite. En este caso se incluye un tercer paso: tras la desgasificación, se añade la proporción necesaria de endurecedor HY96 y, removiendo muy lentamente con una pequeña espátula, se consigue hacer una mezcla homogénea. Este tiempo no debe superar los 20 minutos, pues el epoxi se va entrecruzando por la acción del endurecedor. Una vez bien removido, basta dejar la mezcla en las condiciones deseadas, ya sea sin campo magnético

aplicado, ya sea con él, para que así solidifique y “congele” la microestructura en cada uno de los casos a estudio. El endurecimiento - entrecruzado máximo- se alcanza transcurrido un tiempo de unas 24 horas.

Las fotografías de la microestructura de los fluidos MR que aparecen en los apartados 4.1 y 4.3.1 en esta Tesis han sido realizadas de la manera que se ha explicado anteriormente, esto es, usando el material solidificado. Sin embargo, las imágenes que se muestran en el apartado 4.4.1.2 son imágenes tomadas directamente de la muestra en estado líquido.

Tabla 3. 1. Propiedades de los fluidos magnetorreológicos utilizados en esta tesis.

| | MRC | MRaceite | MRarald | MRNice | Aceite | Aceite+Si+Grasa | Araldite | Fe |
|--|--|--|---|----------------------|-----------------|--|--------------------------|--------|
| Líquido base | Aceite hidrocarburo desconocido | Aceite de oliva | Araldite | Aceite de silicona | Aceite | Aceite de oliva | Araldite | * |
| Partículas | CIP* | CIP* | CIP* | CIP* | No | No | No | * |
| ϕ | 0.2 | 0.03-0.35 | 0.01-0.35 | 0.3 | No | No | No | * |
| Surfactante | Desconocido | Nanopartículas de silicio y grasa de litio | No | Estarato de aluminio | No | Partículas de silicio y grasa de litio | No | * |
| ρ (kg/m ³) | 2229 | * | * | * | 905 | 909 | 1150 | 7800 |
| c (m/s) | 954 | 1354-917 | 1570-1150 | | 1431 | 1445 | 1611 | 5120 |
| α (dB/mm) | 2.2 | 1.0-3.30^ | 0.11-0.57 | * | * | 0.10 | 0.12 | * |
| κ (Pa ⁻¹)*10 ⁻¹⁰ | * | * | * | * | 5.3913 | 5.2649 | 3.3492 | 0.0588 |
| η (Pas) | * | * | * | * | 0.0554 (a 30°C) | ≈ 1Pas | 0.982 (a 30°C) | * |
| Apartados | (4.2.1),(4.2.2),(4.3.1), (4.3.2) y (4.3.3) | (4.1),(4.2.1), (4.3.1),(4.3.2) y (4.3.3) | (4.1),(4.2.1), (4.2.2), (4.3.1),(4.3.2) y (4.3.3) | (4.4) | | (4.1) y (4.2.1) | (4.1), (4.2.1) y (4.2.2) | |

CIP * =Hierro carbonil en polvo. Partículas de hierro, con una pureza del 99% con forma esférica y con un tamaño de entre 1 y 10 micras de diámetro.

^ La atenuación en el MRaceite presenta un máximo de atenuación (3.30 dB/mm), cuando la fracción de volumen de partículas suspendidas es de un 0.16

En la tabla 3.1 se presentan los datos más relevantes de los materiales que se han utilizado durante esta tesis. Las densidades, ρ , compresibilidades, κ , y viscosidades, η , son datos importantes en el caso del aceite, aceite+Si+grasa, araldite y hierro, pues serán los valores que se usarán en los modelos teóricos. La información más importante de los fluidos

magnetorreológicos es la composición, es decir, el líquido base, el tipo de partículas y la fracción de volumen de las mismas, ϕ .

3.2. Técnicas experimentales

3.2.1. Montaje experimental acústico

3.2.1.1. Célula de medida

Las variaciones de tiempo de vuelo (TOF) de pulsos ultrasónicos centrados en 960 kHz son analizados utilizando una técnica de transmisión-recepción. Para ello, se utilizan dos cerámicas piezoeléctricas: una emisora del pulso de excitación que hace que la onda se propague a través del fluido a estudio, y otra, receptora que recoge la señal una vez que ésta ha atravesado la muestra.

La célula de medida consiste en una caja de metacrilato de dimensiones 30x30x6 mm en la cual se han pegado a cada uno de los dos lados de mayor área dos piezocerámicas (PZ27, Ferroperm) con un diámetro de 20mm. De este modo, las ondas ultrasónicas se propagan a lo largo de 6 mm a caracterizar del fluido a estudio como una onda plana longitudinal. Ambas piezocerámicas están cubiertas con una capa de silicona para dotarlas así de protección mecánica y eléctrica. Esta protección también actúa, a su vez, ensanchando la respuesta en frecuencia de las cerámicas y acortando, por tanto, la señal temporal producida, mejorándose así la medida mediante la técnica de transmisión-recepción. En la figura 3.1 se puede ver una foto de la celda de medida.

La célula se diseñó teniendo en cuenta varios condicionantes. En primer lugar se necesita una célula en la cual el camino acústico sea pequeño, pues estos líquidos al tratarse de suspensiones concentradas suelen tener atenuaciones altas y la relación señal/ruido (SNR) decrece rápidamente con la distancia de propagación. Más aún, de acuerdo con Selfridge (Selfridge, 1985), las distancias laterales de la muestra deben ser varias veces más grandes que la dimensión de la distancia de propagación de la onda ultrasónica, evitando así que se mezcle la onda directa con los rebotes en las paredes laterales. En segundo lugar, la dimensión en la

dirección de propagación no debe reducirse excesivamente de manera que la señal de excitación y la señal directa no se solapen. Por lo general, las estructuras que se forman son menores que la longitud de onda, aspecto que hay que tener en cuenta para la aplicación de algunos modelos de propagación.

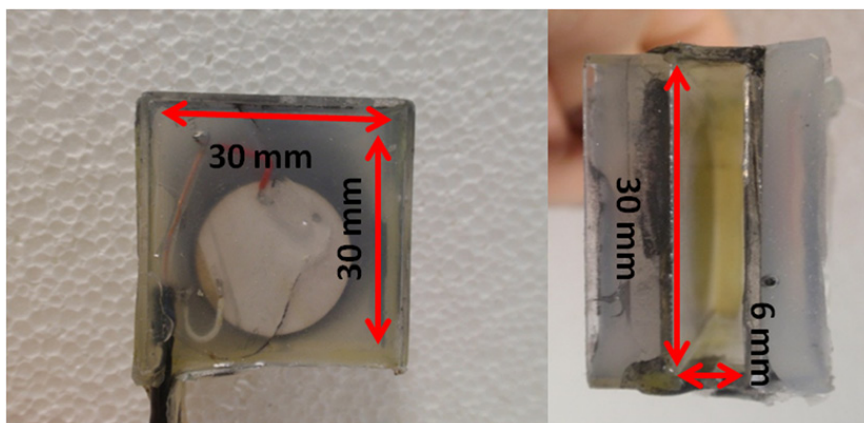


Figura 3.1. Fotografía de la celda de medida.

En cuanto a la forma, se escogió una caja paralelepípedica, ya que es más fácil colocar imanes en cualquiera de las caras de la célula de medida. El hecho de que la forma de la celda no sea cúbica supone una desventaja a la hora de estudiar el efecto de la anisotropía en estos fluidos, pues las dimensiones y, por lo tanto, los campos creados son diferentes. Sin embargo, conviene decir que sí admite una comparación cualitativa entre las configuraciones de campo magnético analizadas, a la par que nos permite comparar los resultados obtenidos con los encontrados en otras referencias bibliográficas.

Las cerámicas utilizadas tienen su resonancia principal cerca de 1 MHz. Se ha elegido esta frecuencia porque permite tener una longitud de onda grande en comparación con las posibles estructuras que se pueden formar en estos fluidos por norma general, y por otra parte, es una frecuencia adecuada para que la señal adquirida no se atenúe excesivamente.

Las dimensiones de las cerámicas fueron escogidas de tal modo que se encontrasen totalmente dentro del campo magnético generado con los diferentes dispositivos, teniendo en cuenta, a su vez, que el área fuese lo más grande posible para poder tener una mejor SNR (en el peor de los casos es de 30 dB). Dadas las dimensiones y frecuencias empleadas, la cerámica

receptora se encuentra en el campo cercano de la emisora (<0.1 m), de modo que los efectos de difracción de la onda son despreciables.

En la figura 3.2 se puede ver diferentes imágenes del montaje experimental acústico con las fuentes de campo magnético que se comentarán a posteriori.

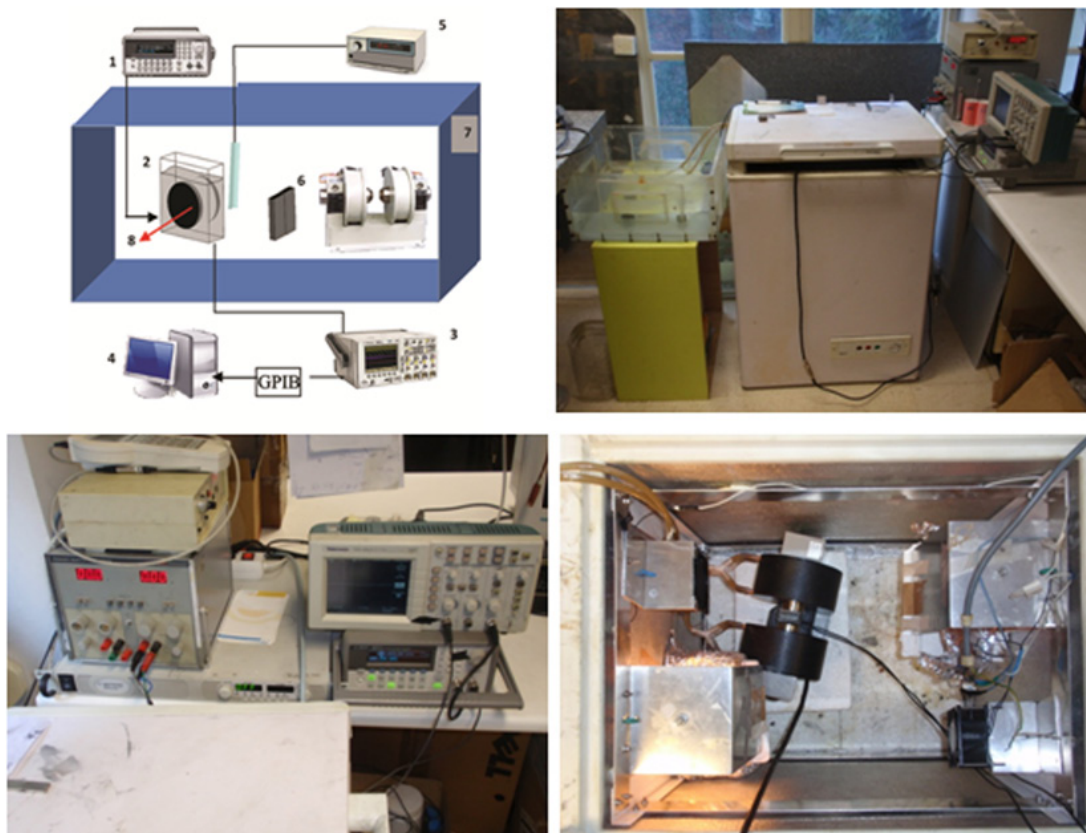


Figura 3.2. En la parte superior izquierda se muestra un esquema del montaje experimental. 1. Generador de funciones, 2. Celda de medida, 3. Osciloscopio digital, 4. Ordenador, 5. Control térmico, 6. Fuentes de campo magnético, 7. Cámara isotérmica de dimensiones 300x400x600mm, 8. Piezocerámicas. En la parte superior derecha se muestra una imagen global del montaje. En la parte inferior izquierda el detalle del generador de funciones, osciloscopio y fuentes de tensión. En la parte inferior derecha un detalle del interior de la cámara isotérmica.

La cerámica emisora está conectada por medio de un cable coaxial a un generador de señales Agilent 33250 A que genera una onda de un ciclo al mismo tiempo que la señal de disparo usada para sincronizar el generador de señales con el osciloscopio digital Tektronix 1020. En uno de los canales del osciloscopio, la cerámica que actúa como receptor está conectada mediante otro cable coaxial. La señal recogida por el receptor es adquirida y

transmitida vía GPIB a un ordenador, proceso que es controlado por medio de un programa desarrollado en LabView. Posteriormente, esta señal es tratada para obtener ciertas características físicas de la muestra, según se detalla en el apartado 3.2.1.2. La celda de medida y los dispositivos que crean los campos magnéticos están colocados en una cámara de dimensiones 300x400x600mm que es utilizada como cámara térmica y cuya temperatura es mantenida a 30.0 ± 0.1 °C mediante un dispositivo térmico de control.

3.2.1.2. Cálculos

3.2.1.2.1 Medidas de velocidad y tiempo de vuelo

En esta sección se describe el método para calcular las variaciones de la velocidad de fase respecto al estado inicial. Para conocer la velocidad absoluta de una muestra, se necesita el conocimiento de un medio de referencia con propiedades conocidas.

A lo largo de cada uno de los ensayos, la célula de medida no es manipulada en ningún momento para asegurar que los cambios medidos sean exclusivamente debidos a variaciones de algún parámetro que se quiera estudiar de la muestra, como puede ser la aplicación de un campo magnético, la variación de temperatura, un proceso de sedimentación..., pero nunca debido a una manipulación externa.

De acuerdo con diversos trabajos (Sachse *et al.*, 1978; Strelitzki *et al.*, 1996; Wear, 2000; Resa *et al.*, 2004), los cambios producidos en las variaciones de tiempo de vuelo (TOF) y la velocidad de fase en función de la frecuencia pueden ser obtenidas por medio del espectro de fases de la FFT (Fast Fourier Transform). Las restricciones experimentales relativas al tamaño de los transductores, a las frecuencias de trabajo y a la atenuación de la onda nos han llevado en esta Tesis a trabajar siempre en una banda de frecuencia centrada en el entorno de 1 MHz.

Si empezamos considerando un fluido cuyas propiedades son conocidas, cuando ocurre un cambio en parámetros internos o externos que influyan en sus características elásticas (ya sea la aplicación de un campo magnético, ya sea la variación de temperatura...), la velocidad de

fase bajo las nuevas condiciones se puede expresar de la siguiente manera (Strelitzki *et al.*, 1996):

$$c = c_0 \frac{1}{1 - \left(\frac{c_0 \cdot \Delta t}{d} \right)} = c_0 + \Delta c \quad (3.1)$$

$$\Delta c = c - c_0 = -\frac{\Delta t \cdot c_0^2}{d} \left(\frac{1}{1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}} \right) \quad (3.2)$$

$$\Delta t = t - t_0 \quad (3.3)$$

El subíndice, 0 , se corresponde con el material usado como referencia y cuyas propiedades son conocidas inicialmente. Las magnitudes sin subíndice se refieren a las propiedades del nuevo material desconocido (o material bajo las nuevas condiciones). c es la velocidad de fase de la onda acústica, Δt es el desfase temporal entre las señales o TOF y t es el tiempo utilizado por la señal ultrasónica en recorrer la muestra a lo largo de la distancia d . Las variaciones de tiempo de vuelo son calculadas a partir del espectro de fases de cada señal (el argumento de la FFT), $\phi(f)$, en función de la frecuencia, f . $s(t)$ representa la señal en el dominio del tiempo, y $S(f)$ el espectro de la señal en el dominio de la frecuencia que ha sido calculado usando el algoritmo FFT. Por lo tanto, $S(f) = FFT(s(t))$; y $\phi(f) = \arg(S(f))$ es el espectro de fase. En la figura 3.3 se presenta un esquema de lo anteriormente detallado.

Cuando dos señales similares son desplazadas un intervalo Δt , debido a las propiedades de la transformada de Fourier, se cumple que:

$$\phi(f) = \phi_0(f) - 2\pi f \Delta t \quad (3.4)$$

$$\Delta t = -\frac{\phi(f) - \phi_0(f)}{2\pi f} \quad (3.5)$$

Lo que significa que los cambios de tiempo de vuelo dependen de la frecuencia. Estas expresiones son válidas para cambios en la fase entre $-\pi$ y π . Si estos cambios son mayores, la ecuación (3.5) debe corregirse en términos de $\pm \frac{\tilde{n}}{2f}$, $\tilde{n} \in N$, aunque \tilde{n} , no es siempre conocida.

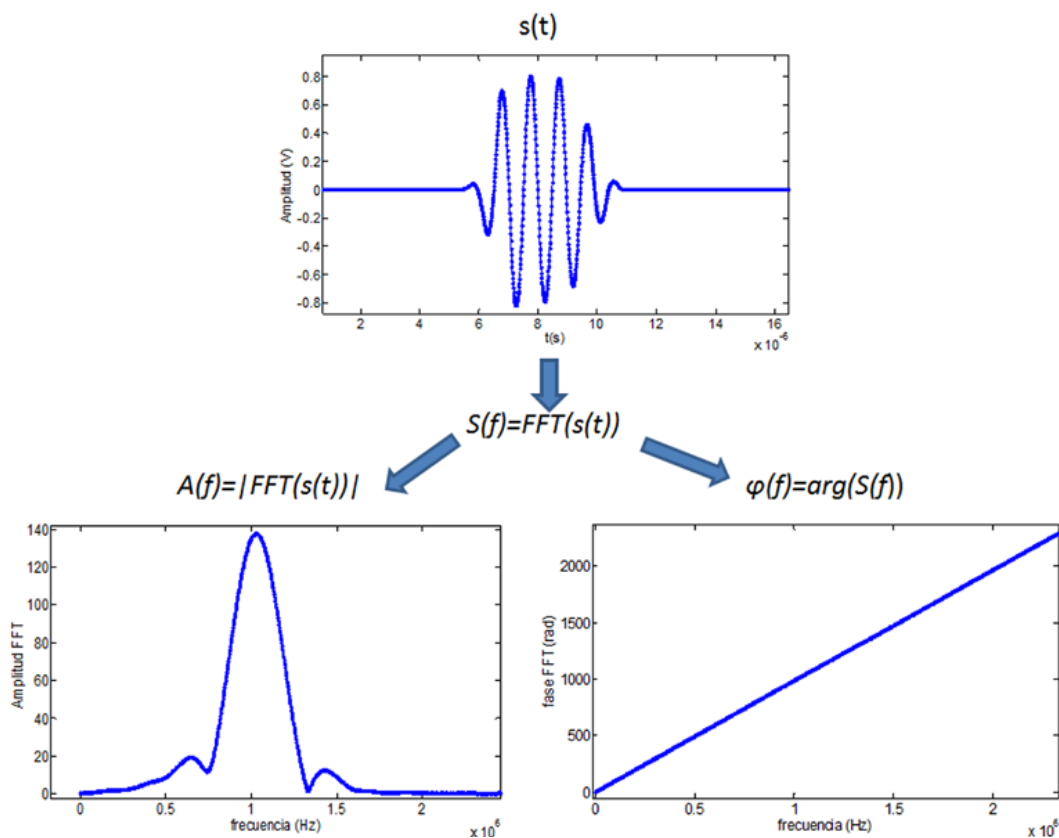


Figura 3.3. Esquema donde se muestra cómo a partir de la señal temporal se obtiene el espectro de fases y la amplitud de la señal en el dominio de la frecuencia. Como se verá posteriormente, la amplitud estará relacionada con la atenuación y la fase con el tiempo de vuelo y, por lo tanto, con la velocidad de propagación.

Las señales recibidas en el osciloscopio son adquiridas por medio de un programa desarrollado en LabView y son sometidas a un procesamiento realizado a través de un programa en Matlab en el que usando la FFT se obtiene la fase de la señal que se está propagando. Para conseguir unos resultados precisos estas señales son pre-procesadas de la siguiente manera:

1. En primer lugar la componente DC de la señal es eliminada restando el valor medio.

2. En segundo lugar, se aplica un ventaneado tipo Hanning a la señal para poder seleccionar tan sólo la onda directa y evitar así el segundo eco y las reflexiones o modos laterales. Estas ondas no deseadas corresponden a una pequeña fracción de energía que alcanza la cerámica receptora tras ser reflejada en los laterales de la célula de medida, de modo que pueden modificar la onda recibida.
3. Cuando se produce un cambio en las condiciones, hay una variación temporal entre las señales, por lo que la ventana debe ser desplazada la misma variación temporal para que el cálculo en amplitud tenga validez.
4. Por último, se añaden ceros a las señales adquiridas, hasta 2^{18} puntos, para obtener una mejor resolución de la FFT. Teniendo en cuenta que el tamaño de la adquisición comprende 2500 puntos y que la configuración de la escala temporal en el osciloscopio se corresponde con un tiempo de 25 microsegundos, el intervalo temporal entre punto y punto es de 10 ns. Dados este intervalo temporal y el número de puntos (2^{18}), en el dominio de la frecuencia la resolución alcanzada es de 380 Hz.

3.2.1.2.2. Calibración de la célula de medida a 30°C

El valor exacto del camino recorrido por la onda, d , es un parámetro importante para poder conocer con precisión tanto los valores absolutos de la velocidad de propagación como los cambios relativos de la velocidad. En lugar de medir esta distancia directamente con un calibre, vamos a usar disoluciones con diferentes concentraciones de agua/etanol a 30°C. Usando este método, se puede obtener de forma precisa el camino recorrido por la señal. Este montaje experimental está calibrado a una temperatura de 30°C y con una señal de excitación de un ciclo centrado en 1 MHz.

D'Arrigo et al midieron la velocidad del sonido de mezclas agua/etanol con diferentes concentraciones a varias temperaturas (en un rango de 30°C a 40°C) y a diferentes frecuencias (desde 10 MHz a 70MHz) (D'Arrigo *et al.*, 1988). En este trabajo, se especifica que no hay procesos de relajación a bajas frecuencias para mezclas cuya fracción molar de etanol sea inferior al 12.5 %. Este comportamiento no dispersivo está de acuerdo con los datos obtenidos por Povey a 30°C y para frecuencias medidas entre 1 MHz y 3MHz (Povey, 1997). Se observa

que para una concentración de 2.5% de fracción molar de etanol en agua, la velocidad de propagación del sonido medida por Povey es de 1548 m/s mientras que la velocidad medida por D'Arrigo et al a 10MHz es de 1547 m/s. Se puede decir que, de acuerdo con los dos trabajos anteriormente citados, la velocidad del sonido es una función lineal con la concentración molar de etanol cuando las concentraciones son bajas. Por lo tanto, usando las medidas de velocidad de propagación a concentraciones molares de etanol en agua de 0%, 2.5% y 5.05%, la ecuación que relaciona los cambios de velocidad, Δc , con el porcentaje de concentración en fracción molar, x , puede ser ajustado a la siguiente expresión lineal:

$$\Delta c = -(14.7 \pm 0.2) \cdot x \quad (3.6)$$

Una vez obtenido este resultado, se han preparado cinco soluciones de agua /etanol con una fracción molar de 0.9%, 1.8%, 2.6%, 3.5% y 4.3% a 30°C y se han medido las variaciones experimentales de tiempo de vuelo, Δt , entre estas cinco muestras y una muestra de agua destilada pura. Así pues, usando las ecuaciones (3.2) y (3.6), los valores experimentales para Δt y x pueden ser ajustados a la siguiente ecuación, donde c_0 , es la velocidad de propagación del agua:

$$\Delta t = -\frac{\frac{d}{c_0} \cdot (14.7) \cdot x}{c_0 + (14.7) \cdot x} \quad (3.7)$$

En la figura 3.4 se puede observar el ajuste del tiempo de vuelo frente a la fracción de molar para las mezclas de agua-etanol utilizadas.

Como resultado de este ajuste, se puede obtener que el camino efectivo recorrido por las ondas ultrasónicas corresponde a $d=5.95 \pm 0.05$ mm.

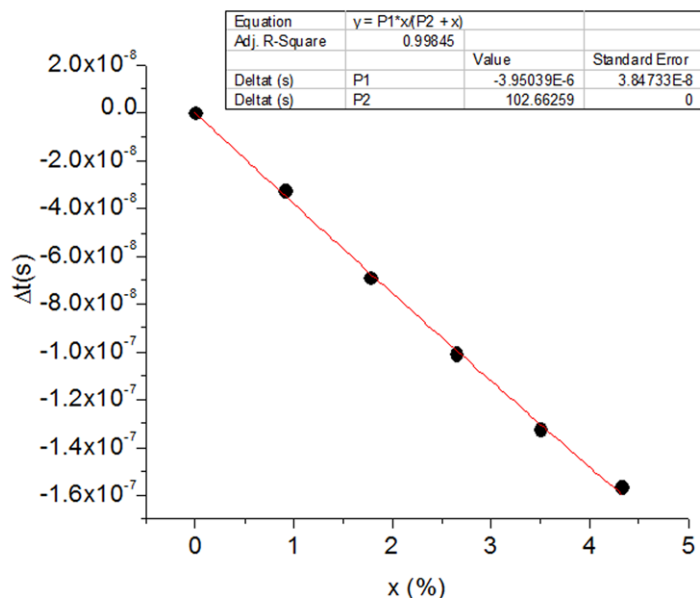


Figura 3.4. En esta gráfica se muestra el ajuste de la variación de tiempo de vuelo frente a la fracción molar en disoluciones de agua y etanol. Los puntos negros son los puntos experimentales y la línea roja el resultado del ajuste.

3.2.1.2.3. Correcciones por la presión de los imanes

Cuando se colocan dos imanes enfrentados y en posición paralela al campo acústico, las paredes de la célula de medida se deforman ligeramente debido a la fuerza de atracción que aparece entre los dos imanes permanentes; por lo tanto, el camino recorrido por los ultrasonidos es modificado y debe realizarse una corrección de este efecto. Para ello se rellena la célula de medida con agua destilada pura, colocando los imanes enfrentados. Debido a la reducción del camino que recorren los ultrasonidos, aparece una reducción del tiempo de vuelo (TOF). El cambio que se produzca en un fluido MR podrá ser calculado a partir del cambio obtenido en agua.

Para ello se sabe que a 30°C la velocidad de propagación del sonido en agua destilada es igual a $c_{agua}=1509.1$ m/s (Del Grosso *et al.*, 1972) y que, debido a la presión que aparece al colocar los imanes, aparece una variación del tiempo de vuelo que corresponde a $\Delta t_{agua}^*=-32$ ns (equivalente a una variación de la longitud de -48 micrómetros). Si sabemos que la velocidad del fluido magneto-reológico que estamos midiendo es c_{MR} , el cambio en el tiempo de vuelo que se producirá por los imanes es:

$$\Delta t_{MR}^* = \Delta t_{agua}^* \cdot \frac{c_{agua}}{c_{MR}} \quad (3.8)$$

En consecuencia, el valor real de la variación de tiempo de vuelo (TOF) que habría que considerar cuando los dos imanes se colocan enfrentados, es:

$$\Delta t_{MR} = \Delta t_{MR}^S - \Delta t_{MR}^* = \Delta t_{MR}^S - \Delta t_{agua}^* \cdot \frac{c_{agua}}{c_{MR}} \quad (3.9)$$

donde Δt_{MR}^S es la variación de tiempo de vuelo medida cuando se aplica el campo magnético por medio de los imanes enfrentados, pero sin aplicar la corrección.

Estas variaciones por el cambio de longitud en la célula de medida, importantes para el cálculo de la velocidad de propagación, son, no obstante, despreciables a efectos de variaciones en la atenuación.

3.2.1.2.4. Medidas de atenuación

En esta Tesis se han medido tanto atenuaciones absolutas como cambios en la atenuación de un fluido mediante dos técnicas diferentes.

Medida de atenuaciones absolutas.

La evolución de la amplitud de una onda plana al recorrer una distancia d responde a la siguiente ecuación:

$$A_d = A_0 e^{-\alpha d} \quad (3.10)$$

donde A_d es la amplitud de la señal tras propagarse a lo largo de una distancia d en un medio con atenuación del sonido α .

Según esto, la medida de la atenuación en un fluido se puede realizar de la siguiente manera. Se excita un transductor resonante a 1 MHz con un pulso, por medio de un generador de tipo escalón Panametrics 1052, en modo pulso-eco. El transductor se acopla a una línea de retardo que está en contacto con el fondo de un recipiente con el fluido que se quiera estudiar,

dirigiendo la propagación de la onda hacia el fluido. La línea de retardo se añade para evitar al medir en pulso-eco que la señal de excitación se mezcle con la señal recibida. Se va añadiendo fluido de modo que la altura del nivel del mismo vaya aumentando y, por tanto, la distancia recorrida por la onda a través del propio fluido. Adquiriendo las amplitudes obtenidas para diferentes alturas, se puede obtener la amplitud en función de la distancia, como indica la ecuación (3.10), y se puede calcular con estos datos el valor de la atenuación. Para medir la distancia recorrida por la onda ultrasónica en el fluido (altura del fluido en el recipiente), la mejor opción es medir con una balanza la masa de fluido añadido; de este modo, conociendo la densidad del fluido y las dimensiones del recipiente utilizado, se obtiene la altura.

En la figura 3.5 se presenta el montaje experimental utilizado.

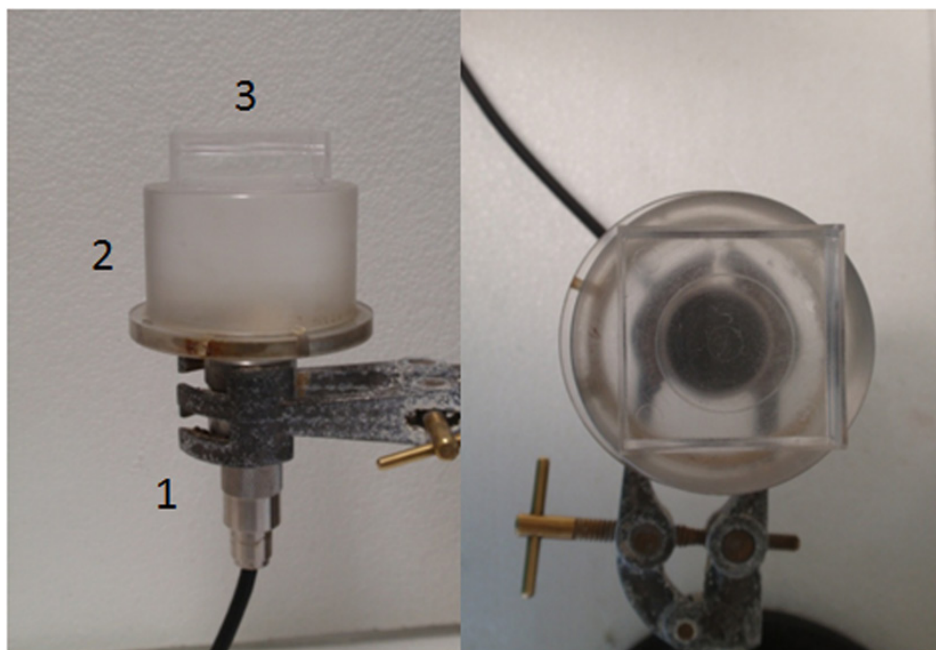


Figura 3.5. Montaje experimental para medir la atenuación absoluta. El transductor, (1), está en contacto con una línea de retardo, (2), que a su vez está en contacto con el recipiente que contiene el fluido que se quiera estudiar, (3).

La incertidumbre de esta atenuación absoluta se obtendría del obtenido al realizar el ajuste para las diferentes distancias obtenidas. Sin embargo, este error es siempre inferior a la incertidumbre por reproducibilidad que está en torno al 6%.

Esta técnica ha sido utilizada para medir las atenuaciones absolutas de las bases de los fluidos de MRaceite y MRaraldite, así como la atenuación absoluta del MRC y MRaraldite al 25%. Como este montaje presenta una celda abierta por su parte superior para permitir modificar la longitud recorrida por los ultrasonidos sin más que añadir un cierto volumen de líquido, no es posible realizar medidas de atenuación de los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético, pues éstos se derramarían. Por esta razón, se hace necesaria la utilización de otra técnica para medir los cambios de atenuación en la que la celda de medida sea cerrada, que justamente es la que se presenta en el siguiente apartado denominado *“Medidas de cambios en la atenuación de un fluido. Medidas de atenuación relativas”*.

Por lo tanto, la obtención de las atenuaciones absolutas de las bases de los fluidos, así como del MRC y del MRaraldite al 25%, no sólo sirve para determinar su valor, sino que también permite utilizar dichos valores como referencia para comprobar la bondad de las medidas realizadas con el montaje experimental que se explica a continuación. Como se verá más adelante, la diferencia entre los valores obtenidos mediante estas dos técnicas para el cálculo de la atenuación es siempre inferior al 10%.

Medidas de cambios en la atenuación de un fluido. Medidas de atenuación relativas.

El cambio en la amplitud de una onda ultrasónica puede deberse a varios factores: la atenuación del medio (absorción y dispersión), la desadaptación de impedancias entre los distintos materiales o la difracción de la onda emitida por el transductor. Como se podrá ver posteriormente, el cambio producido en amplitud en este trabajo será mayoritariamente debido a fenómenos de atenuación. La difracción del haz está desestimada, pues en la medida no se alcanza el régimen de campo lejano. Por otro lado, el análisis del efecto de la desadaptación de impedancias y la atenuación se detalla a continuación.

Para ello, consideraremos nuestro sistema como un modelo de capas infinitas donde la onda se transmite de un medio a otro. Debido a la desadaptación de impedancias entre los medios y debido a la atenuación, se producirán variaciones en la amplitud de la señal. Se

hablará de cambios en la atenuación porque siempre se comparará con una medida inicial de referencia.

El sistema queda representado por el esquema que parece en la figura 3.6.

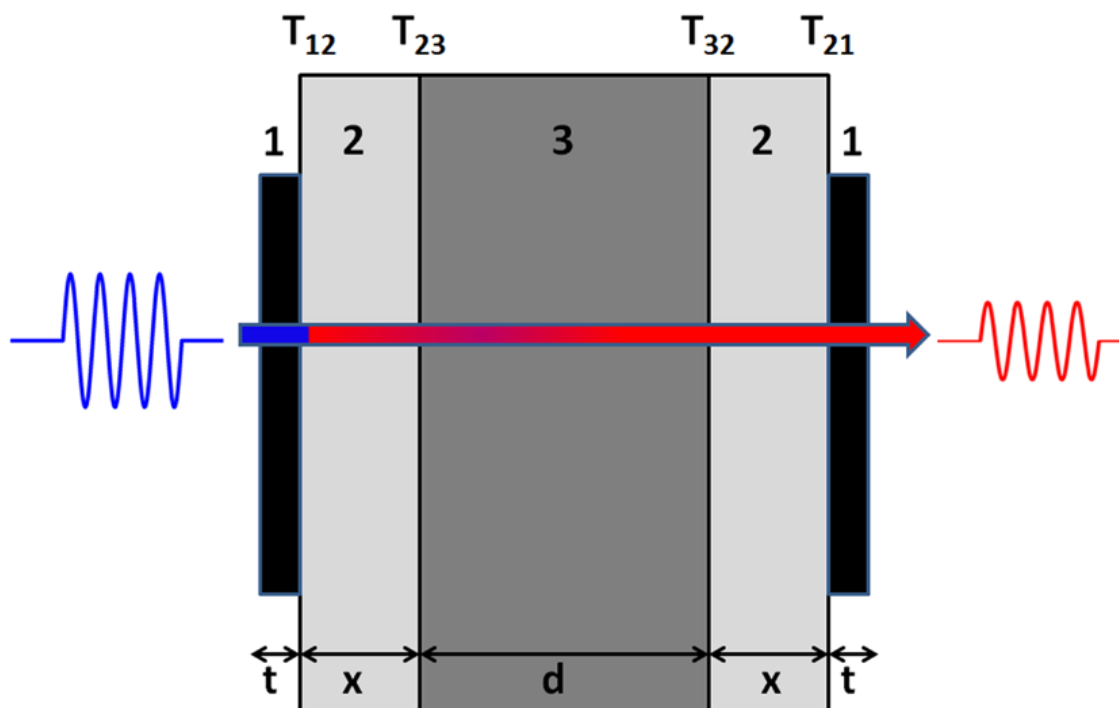


Figura 3.6. Esquema de modelo de capas para nuestra célula de medidas. Los medios (1) son las cerámicas, los medios (2) son las paredes del metacrilato, y el medio (3) el fluido de estudio. “ t ”, “ x ” y “ d ” son los espesores de las capas, y los términos “ T_{ij} ” son los coeficientes de transmisión entre los medios “ i ” y “ j ”. La señal azul es la señal incidente, mientras que la roja es la señal medida a la salida de la célula de medida.

En este modelo, cada vez que la señal se encuentra con una interfase entre dos medios distintos, parte de la energía se reflejará y parte se transmitirá debido a la desadaptación de impedancias entre los medios. Esto es, cuando una onda se propaga de un medio a otro, si las propiedades acústicas son diferentes, parte de la energía se refleja y parte se transmite. La energía que se transmite en la interfase ij responde a la siguiente expresión:

$$A_t = T_{ij} A_i \quad (3.11)$$

donde A_t es la amplitud transmitida, A_i es la amplitud incidente en la interfase, y T_{ij} es el coeficiente de transmisión entre los medios i y j . Este coeficiente de transmisión está

relacionado con las impedancias acústicas y, por lo tanto, con las velocidades de propagación y las densidades de cada medio, de la siguiente manera:

$$T_{ij} = \frac{2z_j}{z_i + z_j} \quad (3.12)$$

$$z_i = \rho_i c_i \quad (3.13)$$

donde z es la impedancia acústica específica, ρ es la densidad y c es la velocidad de fase de la onda.

Además, debido a la atenuación del medio, cuando la onda recorre una distancia d , la amplitud disminuye según la ecuación (3.10).

Así pues, una señal que incida en nuestra célula de medida, de acuerdo a la nomenclatura mostrada en la figura 3.6, a la salida del mismo tendrá una amplitud:

$$A_{final} = \mathbf{T} e^{-2\alpha_{meta}x} e^{-\alpha d} A_{inicial} \quad (3.14)$$

$$\mathbf{T} = (T_{12} \cdot T_{23} \cdot T_{32} \cdot T_{21}) \quad (3.15)$$

donde T es el coeficiente de transmisión total del sistema, x es la distancia que la onda recorre en el metacrilato, d es la distancia recorrida en el fluido de estudio, α_{meta} es la atenuación acústica del metacrilato y α es la atenuación del medio que es analizado.

Si este ensayo se realiza con dos líquidos diferentes de modo que uno sirva como referencia, al hacer el cociente entre las amplitudes de las señales obtenidas al final de ambos ensayos, se puede obtener la diferencia entre las atenuaciones de ambos líquidos a partir de la siguiente expresión:

$$\Delta\alpha = \alpha - \alpha' = -\frac{1}{d} \ln \left(\frac{\mathbf{T}' A}{\mathbf{T} A'} \right) \quad (3.16)$$

donde las magnitudes con prima (esto es, A' , la amplitud de la señal medida a la salida del sistema y T' , el coeficiente de transmisión del sistema) serán los parámetros correspondientes a

un ensayo, y las magnitudes sin primas (A y T) serán los parámetros correspondientes a otro ensayo.

A partir de la ecuación (3.16), el efecto de la interfase cerámica-metacrilato y la atenuación en el metacrilato se simplifican de numerador y denominador. Sólo influyen, por tanto, las interfases “medio a estudio”-metacrilato.

Para el cálculo de la variación de la atenuación se necesita conocer la distancia que recorre la onda en el fluido de estudio, d (su obtención fue explicado en este mismo capítulo en el apartado 3.2.1.2.2). Los coeficientes de transmisión, como se ha dicho anteriormente, se obtienen si la densidad y la velocidad de propagación del medio son conocidas.

Por último, para calcular la relación entre las amplitudes medidas a la salida del sistema para ambos ensayos, utilizaremos el espectro de amplitud de la FFT de la $s(t)$ dada a una frecuencia específica, que es justamente la frecuencia a la cual la primera señal adquirida presenta un máximo en la amplitud de la FFT

$$A(f) = |S(f)| \quad (3.17)$$

3.2.1.2.5. Incertidumbre

Tanto los cambios de velocidad como de atenuación son medidas indirectas, es decir, son magnitudes que dependen de una función matemática de otras magnitudes medidas o calculadas. Para estas medidas indirectas obtendremos la incertidumbre por medio de propagación de errores.

Las expresiones para el cálculo de la incertidumbre para cambio de velocidad que responde a la ecuación (3.2), corresponde a:

$$e(\Delta c) = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta c}{\partial \Delta t} \cdot e(\Delta t)\right)^2 + \left(\frac{\partial \Delta c}{\partial \Delta c_0} \cdot e(c_0)\right)^2 + \left(\frac{\partial \Delta c}{\partial d} \cdot e(d)\right)^2} \quad (3.18)$$

donde

$$\frac{\partial \Delta c}{\partial \Delta t} = \frac{c_0^2}{d} \cdot \left(\frac{1}{1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}} \right) + \frac{\Delta t \cdot c_0^2}{d} \cdot \left(\frac{\frac{-c_0}{d}}{\left(1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}\right)^2} \right) \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial \Delta c}{\partial c_0} = \frac{2 \cdot \Delta t \cdot c_0}{d} \cdot \left(\frac{1}{1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}} \right) + \frac{\Delta t \cdot c_0^2}{d} \cdot \left(\frac{\frac{-\Delta t}{d}}{\left(1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}\right)^2} \right) \quad (3.20)$$

$$\frac{\partial \Delta c}{\partial d} = \frac{-\Delta t \cdot c_0^2}{d^2} \cdot \left(\frac{1}{1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}} \right) + \frac{\Delta t \cdot c_0^2}{d} \cdot \left(\frac{\frac{\Delta t \cdot c_0}{d}}{\left(1 + \frac{\Delta t \cdot c_0}{d}\right)^2} \right) \quad (3.21)$$

$e(\Delta t)$ se considera la precisión del tiempo de muestreo utilizado en el osciloscopio, siendo este de 10ns.

$e(c_0)$ es la incertidumbre al calcular la velocidad absoluta del fluido que se utiliza como referencia. Este valor va a depender del líquido de medida. Se calcula de la misma manera que la expresión (3.18)), pues la velocidad absoluta de los líquidos se obtiene a partir de la ecuación (3.2), pero usando como medida de referencia la del agua cuya velocidad se conoce con precisión: 1509.144 m/s a 30°C (Del Grosso *et al.*, 1972).

$e(d)=50 \mu\text{m}$ es obtenido del ajuste lineal comentado anteriormente en el apartado (3.2.1.2.2)

En las medidas de la velocidad existen dos fuentes de error que hay que tener en cuenta. Por un lado, está el error obtenido por la propagación de errores, ecuación (3.18), y, por otro lado, la incertidumbre obtenida por la reproducibilidad de los experimentos.

Si cuantificamos el error obtenido por medio de la ecuación (3.18), dependiendo de la medida realizada, ya sea una velocidad absoluta o ya sea un cambio en la velocidad al aplicar un campo magnético, por ejemplo, el error varía entre 1 m/s y 3 m/s. Si se transcribe este valor a

%, numéricamente variará entre, aproximadamente, un 20% cuando los cambios de velocidad producidos son pequeños, un 2% para cambios en velocidad grandes o incluso se puede llegar a alcanzar un 0.2% para las velocidades absolutas.

Sin embargo, cuando se reproduce varias veces el ensayo (dependiendo del ensayo, hasta 8 veces) para estudiar el efecto de la aplicación del campo magnético y la consiguiente comparación cuando no hay campo magnético aplicado, se observa que la dispersión de los resultados, a veces es mayor que la incertidumbre mencionada anteriormente. Esto es debido a que debido a la aplicación del campo magnético, se produce una reordenación de partículas que, ciertamente, es muy difícil que siempre ocurra de la misma manera. La incertidumbre debida a esta falta de reproducibilidad en el estado del fluido es inferior al 6% de la variación en la velocidad de propagación. Esta estimación se ha obtenido restando los valores máximos y mínimos de los resultados obtenidos y dividiendo el resultado entre dos.

La incertidumbre en la velocidad de propagación considerada en este trabajo será siempre el mayor de los dos errores explicados anteriormente. Por lo tanto, para cambios de velocidad pequeños se usará el error obtenido mediante la expresión (3.18), mientras que para cambios grandes, como los resultados con esta expresión son menores que el error que se obtiene al repetir los ensayos varias veces, se considerará una incertidumbre en un entorno del 6%.

Para el caso de la variación de atenuación, cuya expresión corresponde a la ecuación (3.16), la propagación de errores corresponde a:

$$e(\Delta\alpha) = \sqrt{\left(\frac{\partial\Delta\alpha}{\partial d} \cdot e(d)\right)^2 + \left(\frac{\partial\Delta\alpha}{\partial T} \cdot e(T)\right)^2 + \left(\frac{\partial\Delta\alpha}{\partial T'} \cdot e(T')\right)^2 + \left(\frac{\partial\Delta\alpha}{\partial \frac{A}{A'}} \cdot e\left(\frac{A}{A'}\right)\right)^2} \quad (3.22)$$

donde

$$\frac{\partial\Delta\alpha}{\partial d} = \frac{1}{d^2} \ln\left(\frac{T'}{T} \frac{A}{A'}\right) \quad (3.23)$$

$$\frac{\partial \Delta \alpha}{\partial T'} = -\frac{1}{\mathbf{T}' d} \quad (3.24)$$

$$\frac{\partial \Delta \alpha}{\partial \mathbf{T}} = \frac{1}{\mathbf{T} d} \quad (3.25)$$

$$\frac{\partial \Delta \alpha}{\partial \frac{A}{A'}} = -\frac{1}{d} \frac{A'}{A} \quad (3.26)$$

$$e(\mathbf{T}) = \mathbf{T}^2 \left(\sum_{k=4}^{k=1} \left(\frac{e(T_k)}{T_k} \right)^2 \right) \quad (3.27)$$

$$e(T_k) = e(T_{ij}) = \sqrt{\left(\frac{\partial T_{ij}}{\partial z_1} \cdot e(z_1) \right)^2 + \left(\frac{\partial T_{ij}}{\partial z_2} \cdot e(z_2) \right)^2} = \sqrt{\left(2z_2 \cdot e(z_1) \right)^2 + \left(\frac{2z_1}{z_1 + z_2} \cdot e(z_2) \right)^2} \quad (3.28)$$

$$e(z_i) = \sqrt{\left(\frac{\partial z_i}{\partial \rho_i} \cdot e(\rho_i) \right)^2 + \left(\frac{\partial z_i}{\partial c_i} \cdot e(c_i) \right)^2} = \sqrt{\left(c_i \cdot e(\rho_i) \right)^2 + \left(\rho_i \cdot e(c_i) \right)^2} \quad (3.29)$$

$$e\left(\frac{A}{A'}\right) = \sqrt{\left(\frac{\partial \frac{A}{A'}}{\partial A} \cdot e(A) \right)^2 + \left(\frac{\partial \frac{A}{A'}}{\partial A'} \cdot e(A') \right)^2} = \sqrt{\left(\frac{1}{A'} \cdot e(A) \right)^2 + \left(\frac{-A}{A'^2} \cdot e(A') \right)^2} \quad (3.30)$$

Se considera que $e(d)$ y $e(c_i)$ se obtienen de la misma manera que cuando se han utilizado para el cálculo de la velocidad. $e(\rho_i)$ es siempre menor que 1 kg/m^3 . Para $e(A)$ y $e(A')$ consideramos un error inferior a 8mV el cual viene definido por la digitalización vertical del osciloscopio (8bits) y la escala utilizada en las medidas.

Hay tres fuentes de incertidumbre para los cálculos de los errores de las variaciones de atenuación: la incertidumbre obtenida por la propagación de errores, ecuación (3.22); la incertidumbre por reproducibilidad de los experimentos, y, por último, hay que tener en cuenta el error introducido al medir la variación de la atenuación al comparar con un fluido de

referencia y el valor de la atenuación absoluta obtenida en el apartado anterior donde se detallaba el cálculo de la atenuación absoluta.

Al usar la ecuación (3.22), los errores que se obtienen de cada ensayo individual son normalmente inferiores al 4%. Sin embargo, y por las razones explicadas anteriormente relacionadas con la compleja formación de la estructura, al repetir varias veces el ensayo, lo que se observa es un aumento de la dispersión de los resultados que da pie a que el error se pueda acotar superiormente en torno al 6% del cambio de la atenuación. La diferencia entre el valor obtenido de la atenuación absoluta y la atenuación calculada por comparación de atenuaciones con un líquido referencia en un sistema cerrado está en torno al 10%.

La incertidumbre en el cambio de la atenuación será siempre el mayor de los tres errores explicados anteriormente, que por lo general será considerado como un 10%, aunque esta cota para algunos ensayos está sobrevalorada.

3.2.2. Montaje experimental magnético. Generación de campos magnéticos

Dependiendo de las condiciones de medida se pueden usar diferentes fuentes de campo magnético. Para la mayoría de las medidas se ha utilizado un electroimán suministrado por el profesor Dr. J. L. Prieto, del Grupo de Dispositivos Magnéticos, ISOM (UPM). Sin embargo, debido a la geometría de algunos de los ensayos, se han empleado también imanes permanentes o, incluso, bobinas por las que se hacía circular una corriente. De esta manera, se manejaron diferentes dispositivos para generar campos magnéticos adaptados a las diferentes condiciones de medida. Así, un electroimán permite crear campos uniformes e intensos si la célula de medida es pequeña, situando ésta entre los núcleos magnéticos. Una bobina genera un campo magnético uniforme pero de baja intensidad a lo largo de la longitud de la misma, siendo el caso idóneo cuando el dispositivo de medida se puede introducir en el diámetro de la bobina. Por último, los imanes permanentes al ser de tamaño reducido, dan mucha versatilidad, pues se pueden acoplar a la célula de medida en casi cualquier variante geométrica.

La intensidad de campo magnético generada por cada dispositivo ha sido medida mediante un gaussómetro con una sonda Hall FH51 suministrado por Magnet-Physik. Para ello, esta sonda ha sido colocada a lo largo de la célula de medida en diferentes posiciones cuando no había ningún fluido presente. La incertidumbre en la medida oscila entre 2mT y 5mT dependiendo del rango de medida.

3.2.2.1. Electroimán

Es un dispositivo formado por un núcleo de un material magnético en el que se ha enrollado en forma de bobina un hilo conductor recubierto de un material aislante. En la figura 3.7 se puede observar el electroimán que hemos utilizado.



Figura 3.7. Electroimán.

La principal ventaja de este dispositivo es que la intensidad de campo magnético está controlada por el paso de corriente eléctrica a través del hilo conductor. Una vez caracterizada la variación de campo magnético con la corriente es muy fácil generar un campo magnético de la intensidad requerida. El electroimán usado consta de dos núcleos de material magnético enrollados por hilo conductor enfrentados. Si la distancia entre los núcleos es pequeña, en ese espacio entre núcleos se generan campos uniformes. Las principales desventajas de este dispositivo son su tamaño y peso elevado y el hecho de que no permita variabilidad geométrica al aplicar los campos magnéticos. Además, debido a que el paso de corriente por el hilo conductor supone un aporte de calor por efecto Joule, se necesita un circuito de refrigeración

para controlar la temperatura. Pese al dispositivo de refrigeración instalado, es preciso limitar el tiempo de medida y la corriente aplicada para evitar un aumento local de la temperatura.

En nuestro caso se ha empleado una fuente de alto voltaje para alimentar el electroimán con corriente continua. El campo magnético se puede aplicar de manera paralela o perpendicular a la dirección de propagación ultrasónica. Dependiendo de cuál sea el caso, la intensidad de campo será diferente. Esto es debido a las dimensiones de la célula de medida. Si se aplica de manera paralela a la propagación ultrasónica, la distancia entre los núcleos magnéticos será de unos 10mm; mientras que si el campo se dispone de manera perpendicular a la orientación del campo acústico, la distancia entre núcleos será de unos 35mm. En la figura 3.8 se puede ver un esquema de la celda de medida con la dirección del campo acústico y las direcciones de los campos magnéticos generados en la orientación paralela y perpendicular.

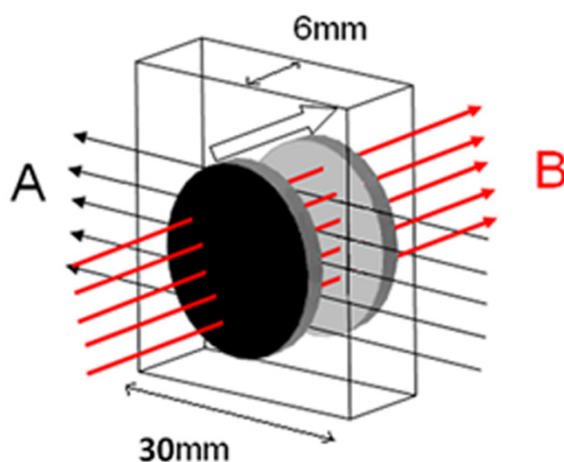


Figura 3.8. Esquema de la célula de medida donde se indican cuáles son las direcciones de los campos aplicados. La flecha blanca indica la dirección de propagación de los ultrasonidos. Las flechas rojas (B) indican la dirección del campo magnético aplicado en la configuración paralela, cuando los campos acústicos y magnéticos son paralelos. Las flechas negras (A) indican la dirección del campo magnético en la configuración perpendicular, cuando el campo magnético es normal al acústico.

La respuesta del electroimán en función del voltaje suministrado se muestra en la siguiente figura 3.9

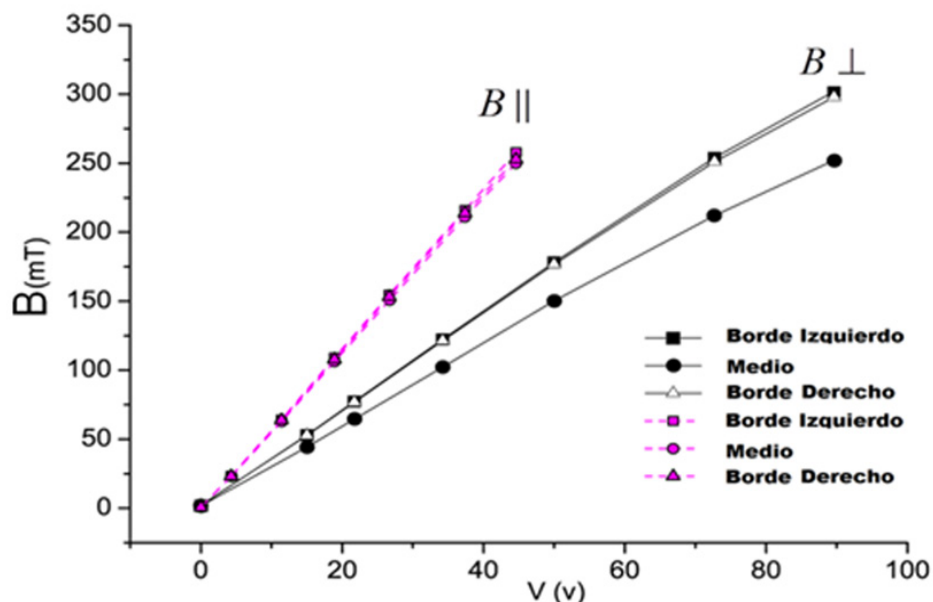


Figura 3.9. Campo magnético obtenido con el electroimán cuando se le aplica un voltaje en continua. Las líneas magentas representan el campo en la configuración paralela cuando la distancia entre núcleos es de 10 mm, mientras que las líneas negras representan el campo en la configuración perpendicular cuando la distancia entre núcleos magnéticos es de 35 mm.

Cuando el campo magnético se genera paralelo al campo acústico, la distancia entre núcleos es de 10 mm. Se observa que el campo producido en el hueco entre núcleos es muy uniforme, siendo este valor muy similar en el medio del hueco y en los bordes (en contacto con los núcleos magnéticos). Por ejemplo, cuando en el medio del hueco se mide una intensidad de campo de 211 mT, se observa que en los bordes del mismo la intensidad medida corresponde a 216 mT y 214 mT. Sin embargo, cuando aplicamos el campo magnético perpendicular al campo acústico, debido a las dimensiones de la célula de medida, la distancia entre núcleos es de unos 35 mm. En este caso se ve que la diferencia de valor de intensidad de campo magnético es mayor entre los bordes y el medio del hueco entre núcleos, siendo esta diferencia menor cuando el voltaje aplicado es menor. Así, para una intensidad de campo magnético de 64 mT en el medio del hueco entre imanes, se observa que en los límites de dicho hueco, cuando se está en contacto con los núcleos magnéticos, la intensidad de campo es de 76 mT y 77 mT respectivamente.

Esta fuente de campo magnético ha sido empleada cuando se ha estudiado el efecto de la fracción de volumen generándose un campo magnético orientado paralelamente al campo

acústico y con una intensidad de 212 mT (apartado 4.1). Esta fuente también ha sido usada al estudiar el efecto de la intensidad, aplicándose diferentes intensidades hasta 212 mT, y de nuevo paralelamente al campo acústico (apartado 4.3.1). Utilizándose esta orientación del campo magnético, se ha estudiado el efecto de histéresis realizando una rampa de subida y bajada hasta 100 mT (apartado 4.3.2). Por último, al estudiar la anisotropía se han creado campos magnéticos paralelos al campo acústico de una intensidad de 60 mT (apartado 4.3.3 tabla 4.7) y de 212 mT (apartado 4.3.3 tabla 4.7), mientras que los campos orientados perpendicularmente han sido aplicados con una intensidad de 60 mT (apartado 4.3.3 tabla 4.7 y apartado 4.3.3 figuras 4.31 y 4.32).

3.2.2.2. Bobina

Es un dispositivo físico capaz de generar un campo magnético uniforme en su interior. Este dispositivo consiste en un alambre conductor aislado enrollado helicoidalmente n veces, por el cual se hace circular una corriente eléctrica que genera en el interior un campo magnético uniforme siempre y cuando se mida en una región alejada de los extremos de la bobina.

Este dispositivo es óptimo para acoplarlo a un reómetro, como se explicará posteriormente, pues teniendo un diámetro suficientemente grande se pueden introducir los elementos necesarios para realizar un ensayo reológico con campo magnético aplicado.

En nuestro caso, la bobina utilizada (figura 3.10) tenía una longitud de unos 15 cm y un diámetro de unos 8 cm, de modo que al aplicar una corriente de 5 A, se obtenía en el centro de la bobina una intensidad de campo magnético de 402 G (40 mT) paralela al campo acústico y, por lo tanto, perpendicular a las placas del reómetro.

Este dispositivo ha sido utilizado en exclusiva en el apartado 4.4 donde se han correlacionado las medidas reológicas con las acústicas.

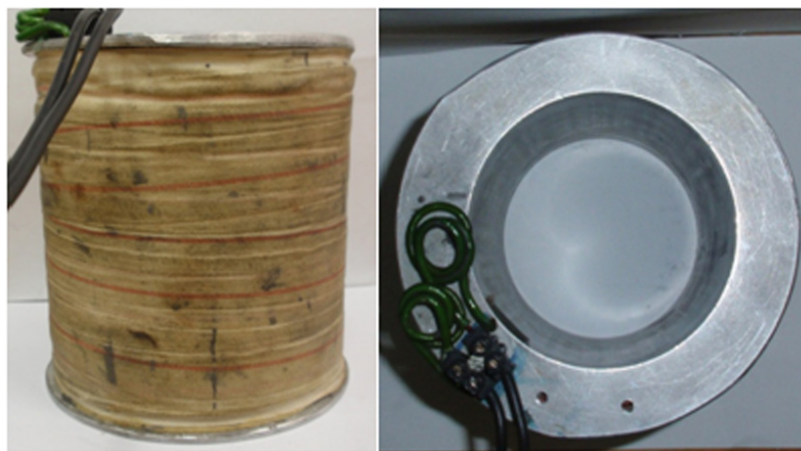


Figura 3.10. Bobina utilizada para generar los campos magnéticos durante el ensayo reológico.

3.2.2.3. Imanes permanentes

Los imanes permanentes tienen la ventaja de que ocupan poco espacio y son muy manejables, y para distancias pequeñas generan campos relativamente intensos comparables con los creados por un electroimán. Además, no necesitan ningún tipo de sistema de refrigeración, por lo que se puede medir durante periodos de tiempo muy largos. Se pueden colocar en casi cualquier disposición, detalle muy importante cuando se tiene poco espacio para maniobrar. Permiten también sumergir la célula de medida en algún líquido como el agua, como se ha hecho para medir la variación de las propiedades acústicas con la temperatura o para medir la estabilidad con un campo magnético aplicado.

Las desventajas principales son el hecho de dar lugar a campos magnéticos menos uniformes que los de un electroimán y que la intensidad de campo sólo se puede variar aumentando o disminuyendo la distancia a la muestra. Además, cuando se colocan dos imanes enfrentados que se atraen mutuamente generan una presión en las caras con las que se ponen en contacto, deformando el recipiente que contiene el fluido MR si este no es demasiado rígido.

En esta Tesis se han utilizado imanes permanentes de NdFeB (figura 3.11) con forma de disco y diámetro de 25 mm y un espesor de 5mm que se han usado para aplicar un campo magnético paralelo al campo acústico, e imanes rectangulares del mismo material y

dimensiones 33x15x5mm que se han utilizado para aplicar campos magnéticos perpendiculares al campo acústico. El campo magnético generado por un solo disco varía de 122 mT a 79 mT a lo largo de 6 mm. Cuando se enfrentan dos imanes en forma de disco separados una distancia de 6 mm, la intensidad varía de 207mT a 217 mT cuando se mide en contacto con las caras de los imanes, obteniendo una intensidad de 210 mT en el punto medio entre ellos (3 mm). Sin embargo, el campo generado por un sólo imán rectangular varía de 304 mT a 9 mT a lo largo de 33mm, teniendo aproximadamente un valor de 30 mT a los 16 mm. Si se enfrentan dos imanes de este tipo, el campo varía de 315 mT a 338 mT a lo largo de los 33mm, siendo en el medio de aproximadamente 57 mT.

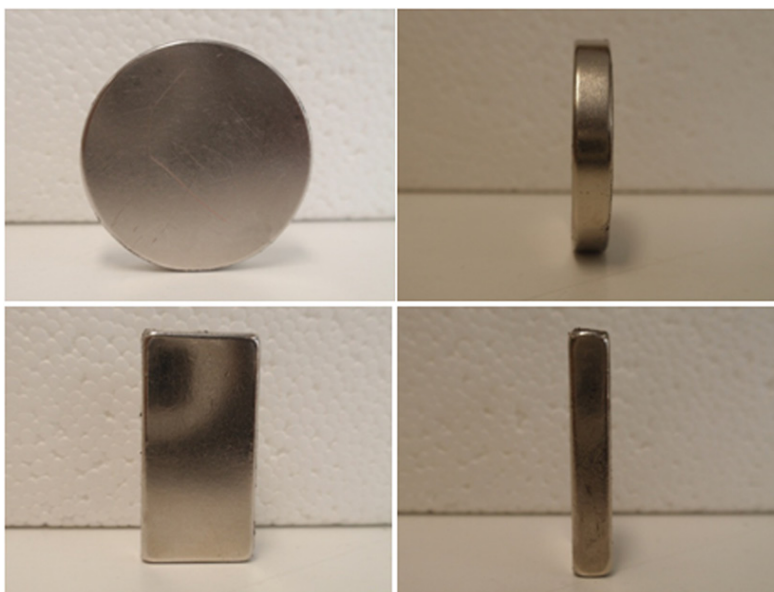


Figura 3.11. Vista frontal y lateral de los imanes utilizados en esta Tesis.

La utilización de los imanes como fuente de campo magnético ha sido requerida en varios apartados. En primer lugar, cuando se ha estudiado la sedimentación (apartado 4.2.1), pues el campo magnético se debía de aplicar durante un largo intervalo de tiempo. En segundo lugar, cuando se ha estudiado el efecto de la temperatura (apartado 4.2.2) porque se necesitaba que la fuente de campo magnético fuese pequeña y porque la muestra iba a ser sumergida en agua. Por último, cuando se ha estudiado la anisotropía (apartado 4.3.3) porque, por una parte, ha servido para comparar los resultados cuando otra fuente de campo magnético, como es el electroimán, ha sido usada, y, por otra parte, porque se necesitaba realizar una secuencia de

campos uniformes/no uniformes orientados en paralelo/perpendicular, siendo los imanes la fuente que podía proporcionar esa versatilidad.

3.2.3. Montaje experimental para la medida del efecto de la temperatura

El estudio realizado sobre el efecto de la temperatura en las propiedades acústicas de los fluidos MR ha sido llevado a cabo en un montaje experimental diferente del explicado anteriormente, pues la variación de la temperatura de forma controlada requiere utilizar un baño térmico en lugar de una cámara de aire para permitir modificar la temperatura del sistema de medida de manera controlada, uniforme y en un rango mayor de temperaturas. Sin embargo, la célula de medida sí es exactamente la misma aunque ha sido protegida para evitar el contacto con el agua, pues esta acelera su deterioro y termina provocando su mal funcionamiento.

Se ha utilizado un baño térmico (F32, Julabo) con agua cuya temperatura es regulable, en nuestro caso hasta 60°C con una precisión de 0.1°C.

El sistema para proteger la célula de medida del contacto con el agua es una caja de plástico de dimensiones (100x70x30mm) en la que se introduce la célula de medida. Será el conjunto de célula de medida y de caja protectora el que se sumerja en el baño de agua.

La temperatura ha sido obtenida por medio de un termopar (Modelo flexible tipo K, RS), introducido dentro de la célula de medida y en contacto directo con el líquido de estudio, aproximadamente a la mitad de la muestra, pero retirada ligeramente hacia un lateral para no influir en la propagación de los ultrasonidos entre las cerámicas emisora y receptora. El valor de la temperatura se adquiere por medio de un software específico comercial (PicoLog Windows).

Estas mediciones tardan en realizarse bastante tiempo, en torno a las 7 horas, pues primero se debe elevar la temperatura hasta la temperatura máxima a la que queremos empezar el ensayo, y, una vez alcanzada, se comienza el proceso de enfriamiento. La larga duración del ensayo y el hecho de que la viscosidad y la densidad de los fluidos disminuyan

debido al incremento de la temperatura, hacen que las fases de los fluidos puedan separarse. Así pues, estas mediciones se han realizado sólo con el fluido MR comercial y el MRaraldite con una proporción de 25% de fracción de volumen de partículas, pues son los más estables.

En este experimento se ha estudiado el efecto de la temperatura tanto sin campo magnético aplicado como con campo magnético aplicado por medio de dos imanes en forma de disco cuyo campo magnético creado ha sido descrito anteriormente, y cuya intensidad es aproximadamente 212 mT. Para ello y como explicaremos más adelante, se debe corregir la distancia recorrida por la onda acústica -48 micrómetros debido a la presión de los imanes, como se calculó anteriormente el apartado 3.2.1.2.3.

Una vez preparado el líquido de estudio, se introduce en la célula de medida. Para la medida con campo magnético, es ahora cuando se colocan los imanes permanentes y se acomoda la célula en la caja protectora. Bajo estas condiciones se introduce la sonda de temperatura en la muestra. Cuando está todo dispuesto, la célula de medida se introduce en el baño térmico ayudado de un brazo mecánico que va a permitir mantener la caja al mismo nivel respecto al agua, favoreciendo así la termalización. Una vez introducida en el baño, se procede a elevar la temperatura hasta los 60°C de manera paulatina. Aunque la muestra esté desgasificada, el mero hecho de verter el líquido en la celda de medida puede atrapar moléculas de aire que se insolubilizan durante el proceso de calentamiento, apareciendo nuevas burbujas en la muestra que modifican la onda. Por ello, la temperatura debe elevarse lentamente y remover ligeramente la muestra para favorecer el escape de las burbujas si es que estas se han formado.

La medición comienza cuando, una vez estabilizada la temperatura del sistema, éste se saca del baño térmico y se empiezan a adquirir los datos de temperatura y las señales hasta que se alcanza la temperatura ambiente. La curva de enfriamiento se puede ver en la figura 3.12.

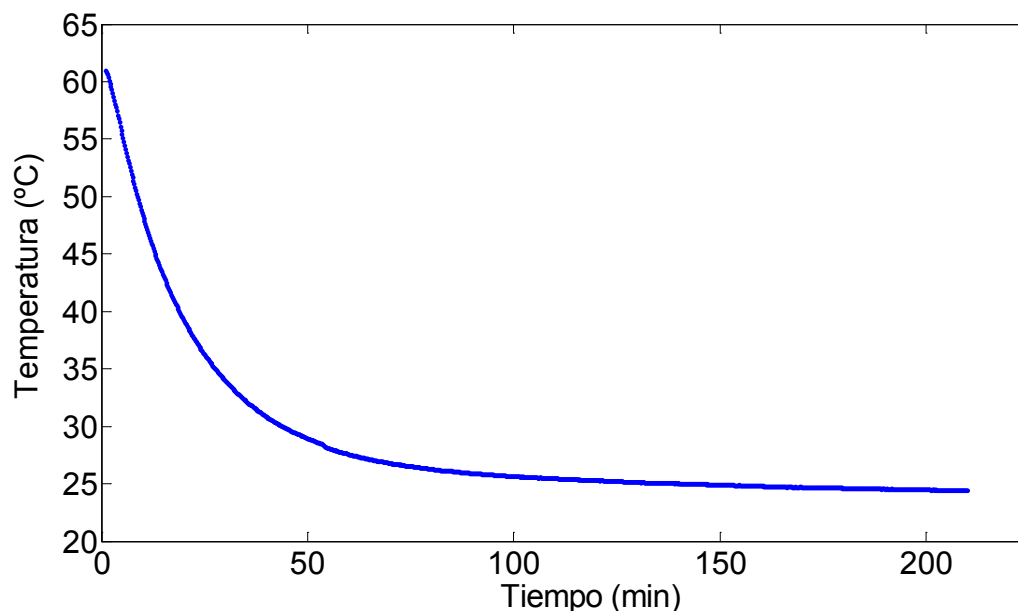


Figura 3.12. Variación de la temperatura de la muestra con el tiempo cuando se produce un proceso de enfriamiento.

3.2.3.1. Proceso de cálculo

El cálculo de la velocidad y del cambio de atenuación no difiere demasiado de lo presentado anteriormente en el apartado 3.2.1.2, pues se van a seguir utilizando las ecuaciones (3.2) para el cálculo de las variaciones de la velocidad, y la ecuación (3.16) para el cálculo de las variaciones de la atenuación. La principal diferencia reside en que hay que introducir una serie de correcciones debido al efecto de la temperatura sobre la célula de medida. Estas correcciones para la amplitud van a ser muy pequeñas, pues los cambios en la amplitud de onda por dilatación de la longitud y los cambios de amplitud de onda transmitida por variación de impedancias son pequeños. Sin embargo, tienen más importancia en el cálculo de la velocidad de propagación, pues es más sensible a las variaciones producidas en los materiales. Los procesos de medida y de cálculo son exactamente iguales cuando se consideran las medidas con y sin campo magnético aplicado, salvo que la longitud que recorren los ultrasonidos a 30°C cuando no hay campo aplicado es de $L_0=5.95\text{mm}$, mientras que, si se aplica el campo magnético por medio de los imanes la longitud es de $L_0=5.91\text{mm}$. Esta disminución es debida a la presión de los imanes que reduce el tamaño de la célula de medida. Esta corrección se obtiene del apartado (3.2.1.2.3). Obviamente los tiempos de vuelo serán igualmente

diferentes. Por tanto, aunque aquí lo presentemos de manera genérica, a la hora de hacer los experimentos se ha tenido que desarrollar todo lo que se va a exponer en adelante por partida doble, con campo y sin campo aplicado. Hay que indicar que, al medir variaciones de magnitudes acústicas, siempre vamos a tener como referencias conocidas los valores de dichas propiedades a 30°C.

Para el cálculo de la velocidad de propagación en los fluidos MR en función de la temperatura, partimos de la ecuación (3.2). El tiempo de vuelo que aparece en esa ecuación, Δt , va a describir, en este caso, el cambio de tiempo debido a las variaciones en velocidad en el medio estudiado ocasionadas por el cambio de temperatura. Este tiempo corresponde al tiempo de vuelo medido experimentalmente, Δt_s , corregido con las variaciones de tiempo vuelo ocasionadas por el cambio de camino acústico debido a la dilatación de la celda de medida, Δt_l , más las variaciones que se producen en el resto del sistema de medida (transductores y pared de la celda) por el efecto de la temperatura, Δt_c :

$$\Delta t = \Delta t_s + \Delta t_l + \Delta t_c = \Delta t_s + \frac{\Delta d}{c_{MR}} + \Delta t_c \quad (3.31)$$

donde Δd es el cambio de camino acústico en el fluido por dilatación. Esta variación la consideraremos lineal a lo largo de la distancia recorrida por los ultrasonidos, $\Delta d = d\xi(T-30)$, donde ξ es el coeficiente de dilatación lineal del metacrilato que es igual a $70.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, T es la temperatura de la muestra y d es el espesor de la muestra a 30°C.

Sustituyendo estas dos últimas expresiones en la ecuación (3.2) particularizada para el fluido MR y despejando la velocidad del fluido MR, obtendremos:

$$c_{MR} = \frac{d(1 - \xi(T-30))}{\frac{d}{c_0} + \Delta t_s + \Delta t_c} \quad (3.32)$$

donde en este caso c_0 es la velocidad del fluido MR a 30 °C con o sin campo, según lo que se esté calculando.

La corrección del tiempo de vuelo debido al resto de variaciones que se producen en el sistema de medida por el efecto de la temperatura, Δt_c , se puede obtener por medio de la calibración en un líquido de referencia. En nuestro caso, para obtenerlo se ha utilizado agua destilada. Despejando dicho término, que es independiente del fluido que midamos de la ecuación (3.31), y sustituyendo Δt por el valor obtenido a partir de la velocidad de propagación teórica en el agua en función de la temperatura (Del Grosso *et al.*, 1972), Δt_w , tenemos:

$$\Delta t_c = \Delta t_w - \Delta t_{sw} - \Delta t_{lw} \quad (3.33)$$

donde el subíndice *w* hace referencia a los valores para agua destilada. Las variables de la ecuación (3.34) han sido ajustadas a un polinomio de tercer grado en la temperatura para poder tener una expresión general para cualquier temperatura dentro del rango de temperatura medido. En la figura 3.13 se pueden ver Δt_w y Δt_{sw} , es decir, los valores teóricos y experimentales para el agua.

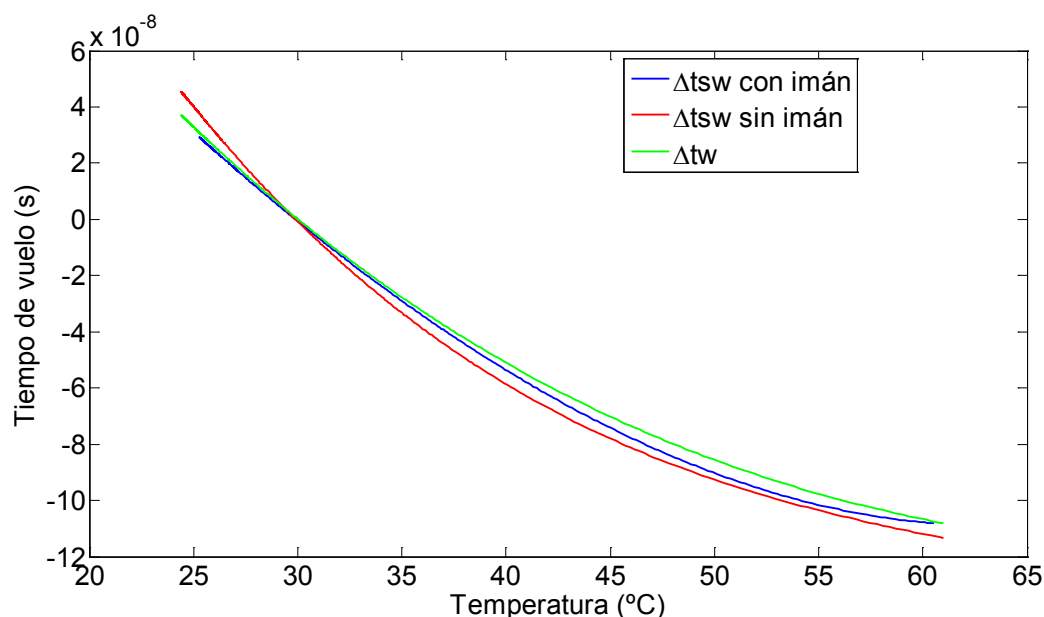


Figura 3.13. Variación del tiempo de vuelo teórico, Δt_w , y medido experimentalmente, Δt_{sw} , con y sin imán, en función de la temperatura.

Las correcciones tanto por dilatación en el camino acústico como por variaciones de temperatura en el resto del sistema son inferiores a 10ns en agua. Sin embargo, como se

observa en la figura 3.13, los cambios por variación de la temperatura son hasta de 150 ns cuando se comparan velocidades de temperaturas muy distintas.

Este montaje experimental y este proceso de cálculo serán utilizados al estudiar el efecto de la temperatura (apartado 4.2.2).

3.2.4. Montaje experimental óptico

Una de las técnicas experimentales utilizadas en esta Tesis consiste en la toma de fotografías de la microestructura solidificada correspondiente a las muestras de fluido MR formado con Araldite y diferentes fracciones de volumen. Para ello, se ha empleado un microscopio óptico (Nikon Eclipse 50i) observándose en modo reflexión y una cámara digital (Nikon DS-Fi1) para capturar las imágenes (Figura 3.14).

Se han utilizado dos objetivos diferentes de x10 y x20 aumentos para obtener imágenes con más detalle de la microestructura. No ha sido necesario el uso de otros aumentos, pues las estructuras formadas son como mínimo del orden de las decenas de micras.



Figura 3.14. Microscopio Nikon Eclipse 50i y la cámara digital Nikon DS-Fi1.

En otro experimento que se detalla a continuación, se relacionaron las medidas acústicas con medidas reológicas y ópticas. En este caso la parte óptica consistió en obtener fotografías de los procesos que ocurren cuando se está realizando un ensayo reológico. Para ello, se utilizó

un objetivo de x4 aumentos acoplado a una cámara digital (Pulnix TM 6CN) y se adaptó a la base del reómetro (Figura 3.15). Posteriormente, tras la captura de las secuencias con un software (DVD Video Soft Free Video) se obtuvieron los fotogramas de dicho vídeo. Estos ensayos se realizaron en el LPMC (CNRS-Universidad Sophia-Antípolis de Niza).



Figura 3.15. Objetivo de x4 aumentos acoplado a una cámara digital (Pulnix TM 6CN).

Este montaje experimental ha sido usado para obtener las imágenes de la microestructura que aparecen en esta Tesis. El microscopio que se muestra en la figura 3.14 ha sido empleado en el apartado 4.1 y 4.3.1 mientras que el sistema mostrado en la figura 3.15 fue utilizado en exclusiva en el apartado 4.4.

3.2.5. Montaje experimental reológico

Este montaje consta esencialmente de un reómetro al que se han adaptado técnicas experimentales ópticas y acústicas. De esta manera, es posible observar un mismo ensayo desde tres puntos de vista complementarios y obtener un conocimiento más profundo sobre el proceso estudiado. Una imagen general del sistema experimental con los tres montajes acoplados se puede ver en la figura 3.16 (a) y, en particular, el reómetro con la bobina en la figura 3.16 (b).

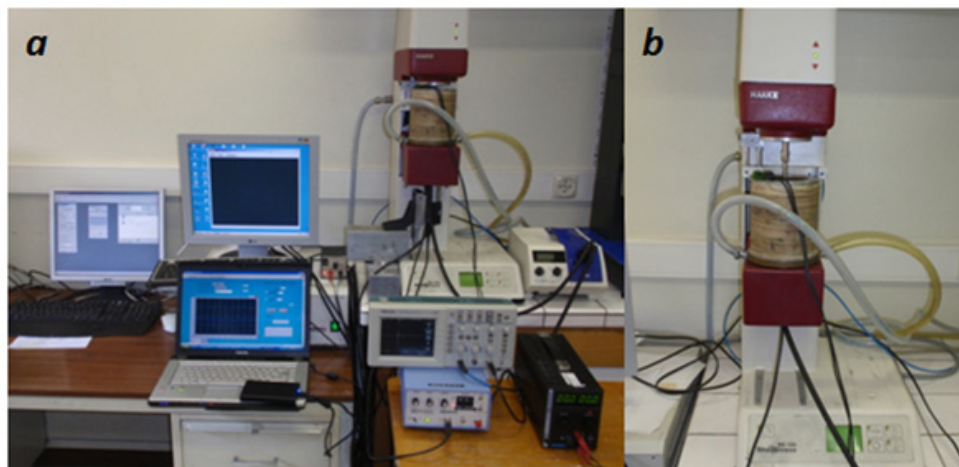


Figura 3.16. (a) Sistema experimental con los tres montajes, reológico, óptico y acústico acoplados.
(b) Detalle del reómetro con la bobina y el sistema de refrigeración.

La base del montaje experimental es un reómetro RS 150 (Haake) con una geometría, PP35Ti, paralela y un diámetro de 35 mm (Figura 3.17 (a)). Esencialmente consta de dos placas. La placa inferior es fija y, en nuestro caso, transparente; en ella se coloca la muestra del líquido. La placa superior es móvil y es la que ejerce las fuerzas, ya sean oscilantes o rotatorias. Esta placa superior es la que se denomina “geometría”. Este dispositivo está controlado por un software llamado RheoWin 3 Job Manager a través del cual se establece la configuración necesaria para realizar los ensayos.

Como se ha descrito anteriormente cuando se ha hablado sobre las fuentes de campo magnético, aprovechando el diámetro de la bobina, es posible colocar tanto la muestra como las dos placas -la geometría y la placa inferior- inmersas en el campo magnético creado.

El montaje óptico detallado anteriormente se ha colocado en contacto directo con la placa inferior de metacrilato donde se coloca la muestra.

Por último, se ha insertado en la placa inferior de metacrilato a ras del nivel de la placa un transductor de ondas longitudinales de 15 MHz para poder medir en pulso-eco sin perturbar el ensayo reológico. En la figura 3.17 (b), se ve un detalle de la adaptación del transductor y el objetivo a la base de metacrilato. En esta configuración, el mismo transductor es utilizado como emisor y receptor de la onda que es reflejada en las superficies que encuentra a su paso. El transductor es excitado por un pulso proporcionado por un Olympus Panametric Pulser-

Receiver que genera también la señal de disparo para sincronizar la adquisición del osciloscopio digital Tektronix 1020. Este obtiene la señal del transductor por medio del dispositivo Pulser-Receiver. Como se ha comentado anteriormente en el montaje experimental acústico, la señal es adquirida y transmitida vía GPIB a un ordenador. El proceso de medida es controlado por un programa de adquisición desarrollado en LabView. Esta señal posteriormente será tratada con el mismo proceso que se explicó anteriormente para obtener los parámetros acústicos (amplitud y variación de tiempo de vuelo).

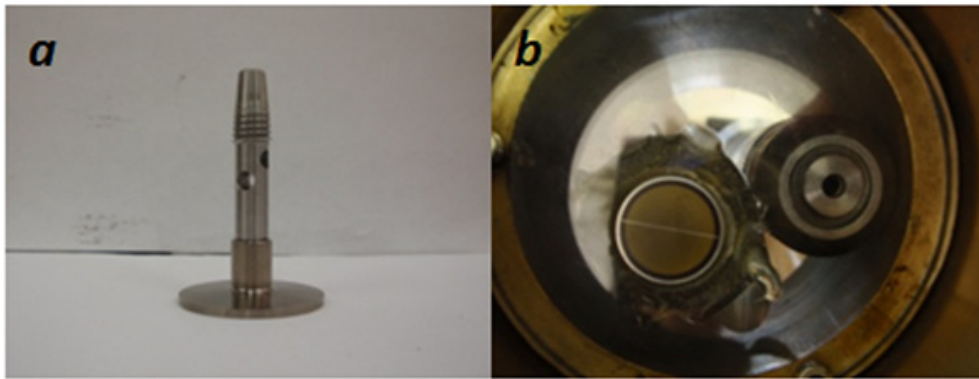


Figura 3.17. Vista de las placas superior e inferior del reómetro. En la imagen (a), se muestra la placa superior o también denominada geometría. Es la placa que gira. En la imagen (b), se aprecia la placa inferior fija del reómetro. Se ve que en este caso es transparente y tiene acoplado un transductor y un objetivo.

El espesor habitual que se usa en este tipo de ensayos reológicos depende de la muestra y el tipo de ensayo, pero suele estar entre las 300 micras y 1 mm. Por esa razón, es posible utilizar transductores de una frecuencia mayor que en los ensayos acústicos descritos anteriormente, pues a pesar de la elevada atenuación a estas frecuencias, el camino recorrido por la onda es pequeño, y por tanto, la SNR de la señal recibida es suficientemente buena (> 15 dB). Se hizo precisa la utilización de esta mayor frecuencia para evitar el solapamiento de los distintos ecos.

Este montaje experimental se ha utilizado en exclusiva en el apartado 4.4.

Capítulo 4

Caracterización mecánica de los fluidos MR

En este capítulo se muestran y discuten los resultados obtenidos relativos a la caracterización de fluidos MR por métodos acústicos. Este capítulo constituye el cuerpo principal de esta Tesis y pone de manifiesto la utilidad de las técnicas ultrasónicas como método de análisis y estudio de este tipo de fluidos.

Inicialmente, se estudia el efecto de la fracción de volumen en las propiedades acústicas de fluidos MR no comerciales con bases fluidas diferentes (MRaceite y MRaraldite), tanto con campo magnético aplicado como sin él. Este apartado pone de relieve la importancia del efecto de la microestructura formada en la propagación acústica. A partir de estos resultados, se seleccionan dos concentraciones de partículas, una para cada uno de los solventes utilizados, dando lugar a dos fluidos MR diferentes. Estas concentraciones se eligieron con objeto de obtener los cambios más significativos en las propiedades acústicas. Asimismo, se estudia el efecto de la temperatura, la sedimentación y otras propiedades -el efecto de la intensidad de campo, la presencia de histéresis mecánica y la anisotropía- de los dos fluidos seleccionados así como del fluido MR comercial (MRC). Se finaliza este apartado estudiando el proceso de ruptura de la microestructura de un fluido MR bajo la acción de un campo magnético debido a la aplicación de un esfuerzo de cizalla. Para caracterizar dicho proceso con mayor precisión se usan tres técnicas, reológicas, ópticas y acústicas, mostrando su complementariedad.

4.1. Efecto de la fracción de volumen de partículas

En este apartado se presentan los resultados experimentales de los cambios de velocidad de propagación y atenuación del sonido, las fotografías obtenidas de la microestructura y el comportamiento descrito por los modelos teóricos dependientes de la fracción de volumen, con y sin campo magnético. Se estudian dos tipos de fluidos magneto-reológicos diferenciados por el solvente utilizado en cada uno de ellos, MRaceite y MRaraldite. Es importante hacer notar que en este apartado el campo magnético, cuando es aplicado, es paralelo a la propagación del campo acústico, uniforme y de una intensidad de 212 mT.

En primer lugar se estudia experimentalmente la influencia de la fracción de volumen en las propiedades acústicas de estos fluidos MR.

Posteriormente se aborda el problema inverso, es decir, se examina la posibilidad de obtener información sobre la microestructura formada en estos fluidos MR, con y sin campo magnético aplicado, a partir de las medidas experimentales acústicas en función de la fracción de volumen. Para este fin, también se han tomado fotografías de las muestras en el Araldite solidificado de modo que podamos tener una idea aproximada de la microestructura. A partir de estas fotos y la información recabada en la revisión bibliográfica del capítulo 1, se propone un modelo de la microestructura. De acuerdo con la microestructura propuesta, se analizan los modelos acústicos de suspensiones de partículas, suspensiones de fibras y materiales porosos más adecuados en cada situación, comparándose los resultados de estos modelos con los experimentales. Esta comparación nos permite discutir la idoneidad de los modelos elegidos así como la posibilidad de identificar de manera genérica qué tipo de estructura se podrá formar dependiendo de la fracción de volumen basándose en las medidas acústicas.

Por último, de todos los fluidos MR sintetizados anteriormente, se seleccionan dos fluidos MR, cada uno de los fluidos con una base y una fracción de volumen diferente. Los criterios utilizados para la selección han sido la obtención del mayor cambio producido en la velocidad de propagación al aplicar un campo magnético y la facilidad para preparar y manejar de manera repetible el fluido. Con estos dos fluidos se realiza un estudio de otras propiedades.

4.1 1. Ausencia de campo magnético aplicado

4.1.1.1. Resultados experimentales

Tabla 4.1. Velocidades, c_0^ϕ (m/s) y atenuaciones, α_0^ϕ (dB/mm) absolutas de los fluidos MRaraldite para varias fracciones de volumen sin campo magnético aplicado. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_0^ϕ en (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$ en (dB/mm), de dichos fluidos comparados con las propiedades acústicas del solvente (fracción de volumen 0%). e es el error y ρ (kg/m³) la densidad. El subíndice 0 indica que no hay campo aplicado.

| ϕ | c_0^ϕ | $e(c_0^\phi)$ | Δc_0^ϕ | $e(\Delta c_0^\phi)$ | α_0^ϕ | $e(\alpha_0^\phi)$ | $\Delta \alpha_0^\phi$ | $e(\Delta \alpha_0^\phi)$ | ρ |
|--------|------------|---------------|-------------------|----------------------|-----------------|--------------------|------------------------|---------------------------|--------|
| 0.00 | 1611 | 2 | 0 | 1 | 0.12 | 0.01 | 0.00 | 0.02 | 1149.7 |
| 0.01 | 1570 | 2 | -41 | 1 | 0.23 | 0.02 | 0.11 | 0.01 | 1216.2 |
| 0.03 | 1516 | 1 | -95 | 3 | 0.39 | 0.04 | 0.27 | 0.02 | 1349.2 |
| 0.06 | 1438 | 1 | -173 | 5 | 0.44 | 0.04 | 0.32 | 0.03 | 1548.7 |
| 0.09 | 1376 | 2 | -235 | 7 | 0.43 | 0.04 | 0.31 | 0.03 | 1748.2 |
| 0.12 | 1310 | 2 | -301 | 9 | 0.43 | 0.04 | 0.31 | 0.03 | 1947.7 |
| 0.16 | 1266 | 2 | -345 | 10 | 0.43 | 0.04 | 0.31 | 0.03 | 2213.7 |
| 0.20 | 1221 | 2 | -390 | 12 | 0.42 | 0.04 | 0.30 | 0.03 | 2479.8 |
| 0.25 | 1187 | 3 | -424 | 13 | 0.43 | 0.04 | 0.31 | 0.03 | 2812.3 |
| 0.35 | 1151 | 3 | -460 | 14 | 0.69 | 0.07 | 0.57 | 0.05 | 3477.3 |

Tabla 4.2. Velocidades, c_0^ϕ (m/s) y atenuaciones, α_0^ϕ (dB/mm) absolutas de los fluidos MRaceite para varias fracciones de volumen cuando no hay campo magnético aplicado. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_0^ϕ en (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$ en (dB/mm), de dichos fluidos comparados con las propiedades acústicas del solvente (fracción de volumen 0%). e es el error y ρ (kg/m³) la densidad. El subíndice 0 indica que no hay campo aplicado.

| ϕ | c_0^ϕ | $e(c_0^\phi)$ | Δc_0^ϕ | $e(\Delta c_0^\phi)$ | α_0^ϕ | $e(\alpha_0^\phi)$ | $\Delta \alpha_0^\phi$ | $e(\Delta \alpha_0^\phi)$ | ρ |
|--------|------------|---------------|-------------------|----------------------|-----------------|--------------------|------------------------|---------------------------|--------|
| 0.00 | 1445 | 1 | 0 | 3 | 0.10 | 0.01 | 0.00 | 0.02 | 909.5 |
| 0.03 | 1355 | 1 | -91 | 3 | 1.0 | 0.1 | 0.9 | 0.1 | 1116.2 |
| 0.06 | 1280 | 2 | -166 | 5 | 1.8 | 0.2 | 1.7 | 0.2 | 1322.9 |
| 0.09 | 1211 | 2 | -234 | 7 | 2.3 | 0.2 | 2.2 | 0.2 | 1529.6 |
| 0.12 | 1153 | 2 | -292 | 9 | 2.6 | 0.3 | 2.5 | 0.2 | 1736.4 |
| 0.16 | 1089 | 2 | -356 | 11 | 3.3 | 0.3 | 3.2 | 0.3 | 2012.0 |
| 0.20 | 1036 | 3 | -409 | 12 | 3.1 | 0.3 | 3.0 | 0.3 | 2288.0 |
| 0.25 | 987 | 3 | -458 | 14 | 2.8 | 0.3 | 2.7 | 0.2 | 2632.1 |
| 0.35 | 918 | 3 | -527 | 16 | 1.6 | 0.2 | 1.5 | 0.1 | 3321.2 |

En la tabla 4.1 y 4.2 se presentan las velocidades, c_0^ϕ , y atenuaciones absolutas, α_0^ϕ , de los fluidos MR estudiados, MRaraldite y MRaceite, y las variaciones de esas mismas magnitudes

cuando son comparadas con las propiedades del solvente sin partículas (fracción de volumen 0%), $\Delta c_0^\phi = c_0^\phi - c_0^{\phi=0}$ y $\Delta \alpha_0^\phi = \alpha_0^\phi - \alpha_0^{\phi=0}$. En las figuras 4.1 y 4.2, se presentan la variación de la velocidad de propagación del sonido, Δc_0^ϕ , y el cambio en la atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$, para los dos fluidos magneto-reológicos dependientes de la fracción de volumen cuando son comparados con los fluidos base sin partículas. Se muestran las diferencias de estos valores para hacer hincapié en el cambio que se produce al aumentar la fracción de volumen de partículas.

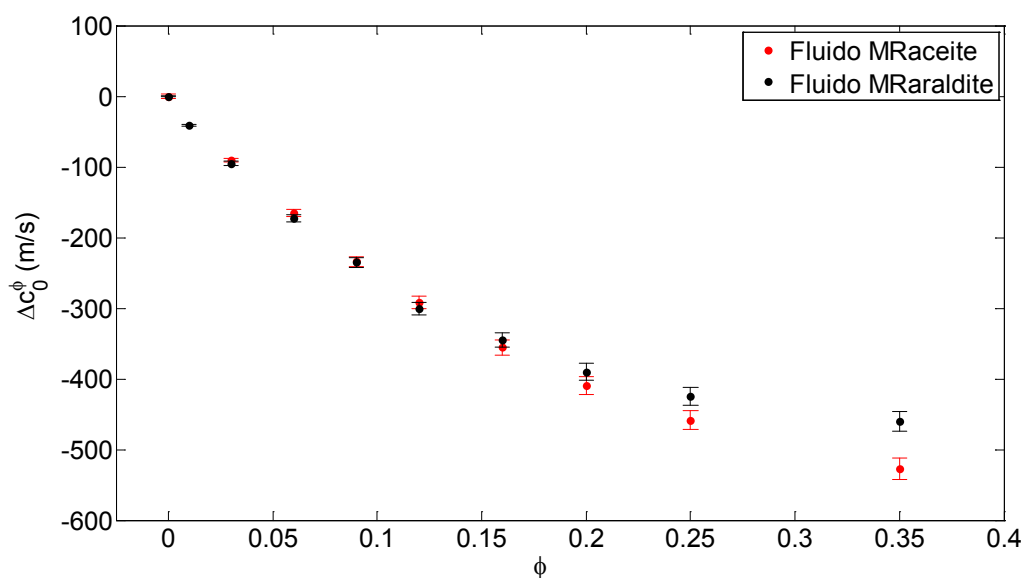


Figura 4.1. Cambio de la velocidad de propagación del sonido, Δc_0^ϕ , dependiente de la fracción de volumen cuando es comparado con el solvente que forma el fluido MR. Los puntos negros se corresponden con el fluido MRaraldite, mientras que los puntos rojos se corresponden al fluido MRaceite.

En la figura anterior, se advierte que en ambos casos el comportamiento es similar; hay una reducción de la velocidad de propagación del sonido según se aumenta la fracción de volumen de partículas. El hecho de añadir partículas a cada uno de los fluidos supone un doble efecto, disminuye la compresibilidad del medio y, a su vez, la densidad del medio se ve incrementada porque aumenta la fase sólida. En este tipo de fluidos, este último efecto es más notable. Esto se debe a que el aumento de la densidad es el responsable de esta disminución de la velocidad de propagación, como se puede inferir de la ecuación 2.10. Esta imagen sencilla de líquido homogéneo nos permite tener una idea intuitiva de lo que ocurre. Esto será matizado posteriormente cuando se analice este comportamiento con los modelos teóricos para

suspensiones de partículas. Cuantitativamente se puede apreciar que los cambios son mayores para el fluido con base de aceite.

En la siguiente figura se presentan los resultados para los cambios de atenuación en ambos fluidos MR respecto al líquido base (cuando la fracción de volumen de partículas es cero).

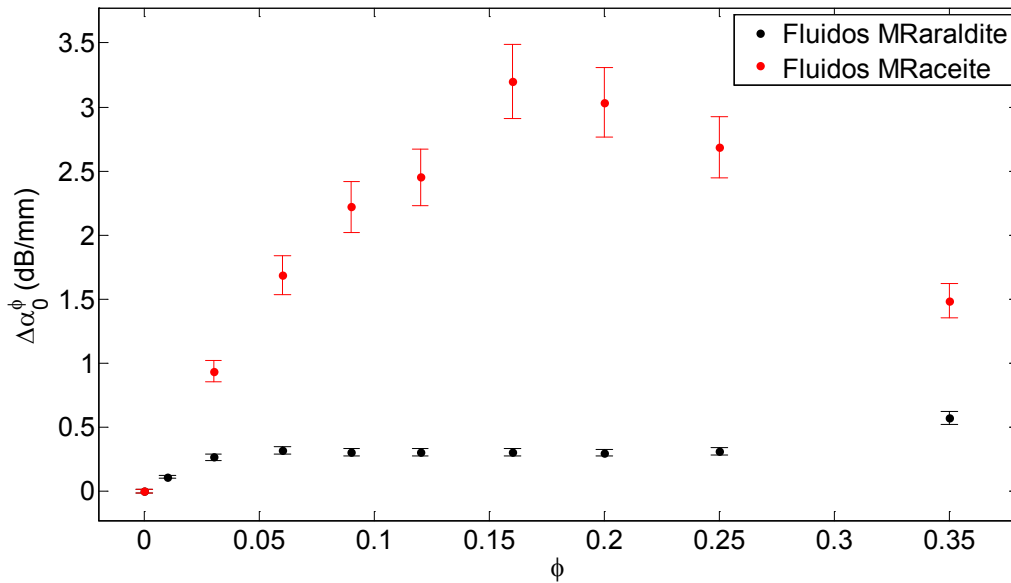


Figura 4.2. Variación de la atenuación, $\Delta\alpha_0^\phi$, en función de la fracción de volumen respecto a la atenuación cuando no hay partículas de hierro. Los puntos negros se corresponden con los diferentes fluidos MRaraldite, mientras que los puntos rojos se corresponden con las diferentes suspensiones MRaceite.

En la figura 4.1, se puede observar que el efecto de añadir partículas a un solvente sobre la velocidad de propagación es similar independientemente del fluido utilizado; sin embargo, en la figura 4.2, se muestra cómo el cambio en la atenuación tiene un comportamiento diferenciado en cada tipo de MR. Si se tiene en cuenta que las atenuaciones absolutas de las bases de los dos fluidos MR ($\alpha_0^{\phi=0}$) son similares, como se puede observar en las tablas 4.1 y 4.2, los cambios son mucho mayores para el caso del MRaceite que los del MRaraldite. Además, el MRaceite presenta un máximo de atenuación en torno al 0.16 de fracción de volumen; mientras que en el caso del MRaraldite, el cambio en la atenuación es aproximadamente

constante a partir del 0.03, aunque se puede apreciar un máximo relativo al 0.06, observándose finalmente una ligera subida para fracciones de volumen más altas (>0.3).

4.1.1.2. Microestructura

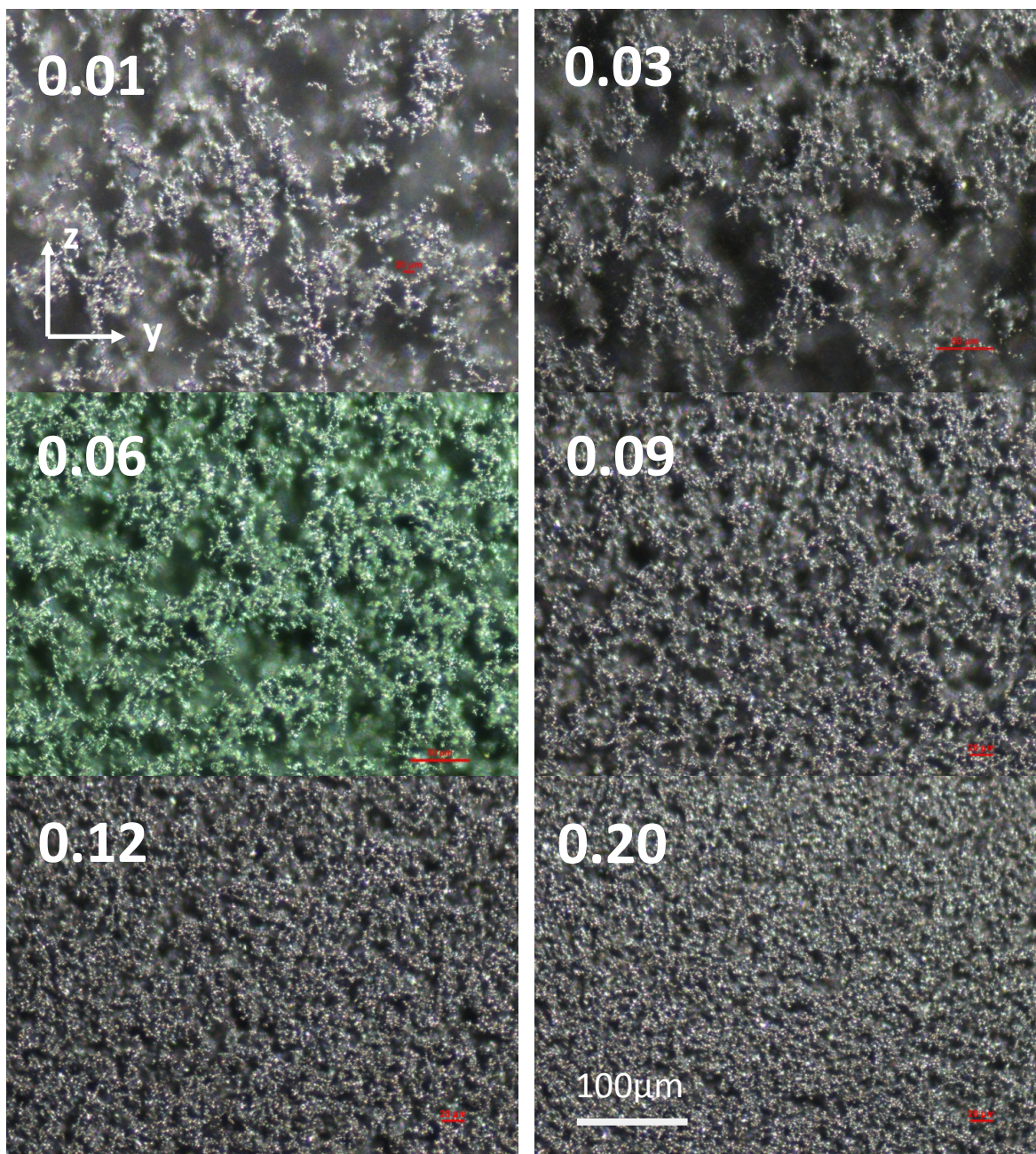


Figura 4.3. Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando no hay campo magnético aplicado. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala es la misma $100\mu m$.

A priori, se puede intuir que, al añadir unas partículas en un fluido, la microestructura que se formará será la de una suspensión. Aunque puede ser un resultado esperado, con miras a establecer un paralelismo a la hora de analizar el caso de la aplicación de un campo magnético donde la estructura no es tan obvia, procedemos del mismo modo; esto es, se realizan unas fotografías de la microestructura del MRaraldite sólido para corroborar la posible estructura y así buscar un modelo teórico de acuerdo con las imágenes. En la figura 4.3, se presentan las fotografías de las muestras de MRaraldite sólido cuando no se ha aplicado ningún campo magnético. Se recuerda que las fotografías que se muestran corresponden a muestras de Araldite y partículas de hierro que han sido solidificadas al añadir un endurecedor.

En estas fotografías de la microestructura se aprecia cómo, cuando no hay campo magnético aplicado, independientemente de la fracción de volumen, la estructura que prevalece es la de una suspensión de partículas esféricas. Se encuentran, en cierto modo, algo aglomeradas, observándose también cómo, al aumentar la fracción de volumen, los huecos entre capas de diferentes planos se hacen menos evidentes, provocándose que la estructura sea más homogénea. Por lo tanto, de acuerdo con las fotografías de la microestructura, se puede proponer como modelo teórico de propagación acústica el correspondiente a una suspensión de partículas esféricas en un solvente.

4.1.1.3. Modelos teóricos

Como se indicó en el capítulo 2, se utilizan en esta Tesis los modelos de Urlick (ecuaciones 2.12-2.16) y de Harker y Temple (ecuaciones 2.17-2.23) para describir el comportamiento de las suspensiones de partículas. Uno de los parámetros significativos del modelo de HT es el tamaño de partícula. Se ha realizado un análisis de dicho tamaño y se ha obtenido que el diámetro más representativo es de $5 \mu m$. Este dato es coherente con la información del proveedor de partículas, pues asegura que el tamaño de partícula está entre 1 y $10 \mu m$.

El MRaraldite es una suspensión bifásica de partículas de hierro en Araldite, que es un fluido newtoniano. Así pues, este fluido es un buen candidato de estudio para comprobar la validez del modelo al ser un sistema muy sencillo. El caso del MRaceite resulta más complejo,

pues ya no es un medio bifásico, y, aunque el aceite de oliva sea un fluido newtoniano, al añadir la grasa de litio y las partículas de silicio, el fluido efectivo obtenido ya no se comporta como tal. Esto dificulta su caracterización y hace que, además, quede más alejado de la idealidad del modelo. Según la caracterización de los fluidos, la viscosidad del Araldite a 30°C está próxima al 1 Pa.s, mientras que para la mezcla aceite de oliva-grasa de litio-nanopartículas de silicio es ligeramente menor. En el caso del Araldite, en las especificaciones técnicas del producto aparece el valor para 25°C y se ha podido medir la viscosidad a 40°C por medio de un viscosímetro capilar de vidrio para fluidos newtonianos (Cannon-Fenske, N° 150, Fungilab S.A). Para 30°C se ha interpolado el resultado a partir de estos valores. En el caso del aceite de oliva-grasa de litio-nanopartículas de silicio, la situación es diferente y más complicada, pues es un líquido no newtoniano, por lo que se ha tomado un valor aproximado de su viscosidad.

En las figuras 4.4 y 4.5, se presentan los resultados experimentales y las predicciones de los modelos para el cambio en la velocidad de propagación, Δc_0^ϕ , y el cambio en la atenuación, $\Delta \alpha_0^\phi$. Como se puede observar, se han usado dos tamaños de partícula diferente para cada líquido. Por un lado, 2.5 μm de radio, pues es lo que se ha obtenido del análisis de tamaño de partícula (diámetro 5 μm); y por otro, el valor para el radio que proporciona el mejor ajuste a los datos experimentales.

Para el caso del MRaraldite, las predicciones del cambio de velocidad con el modelo de Urick y el modelo HT son parecidas. Aunque se considere un rango de radios de hasta 4 μm en el modelo de HT, los resultados son muy similares. Esto nos indica que, para la velocidad de propagación, en este régimen de medida en el que la longitud de onda es mucho mayor que el tamaño de partícula, estas predicciones no son demasiado sensibles a dicho parámetro.

Para el caso del MRaceite se aprecia que estas diferencias son más significativas, pues si bien para pequeños tamaños de partícula el modelo de HT vuelve a predecir un comportamiento similar al de Urick, cuando se ensayan tamaños de partícula más grandes se comprueba que los resultados se alejan de las predicciones del modelo de Urick y, además, hay

una mayor concordancia con los resultados experimentales. El modelo de Urick subestima el valor de la velocidad de propagación.

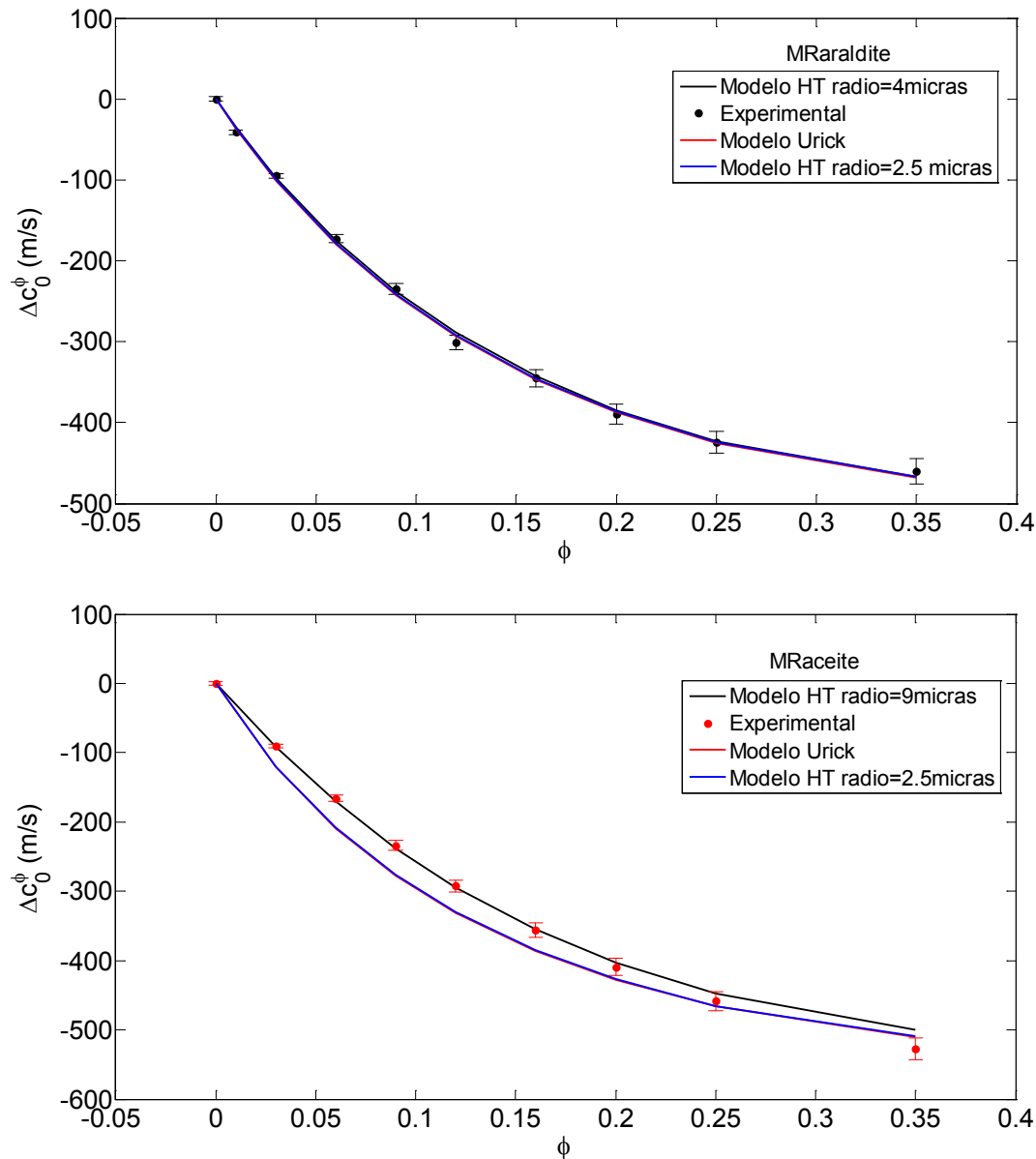


Figura 4.4. Variación de la velocidad de propagación experimental (puntos) y la predicción de los modelos teóricos (líneas) para el MRaraldite (figura superior) y MRaceite (figura inferior).

Veamos en la figura 4.5 qué ocurre con las predicciones de estos modelos para las variaciones de atenuación.

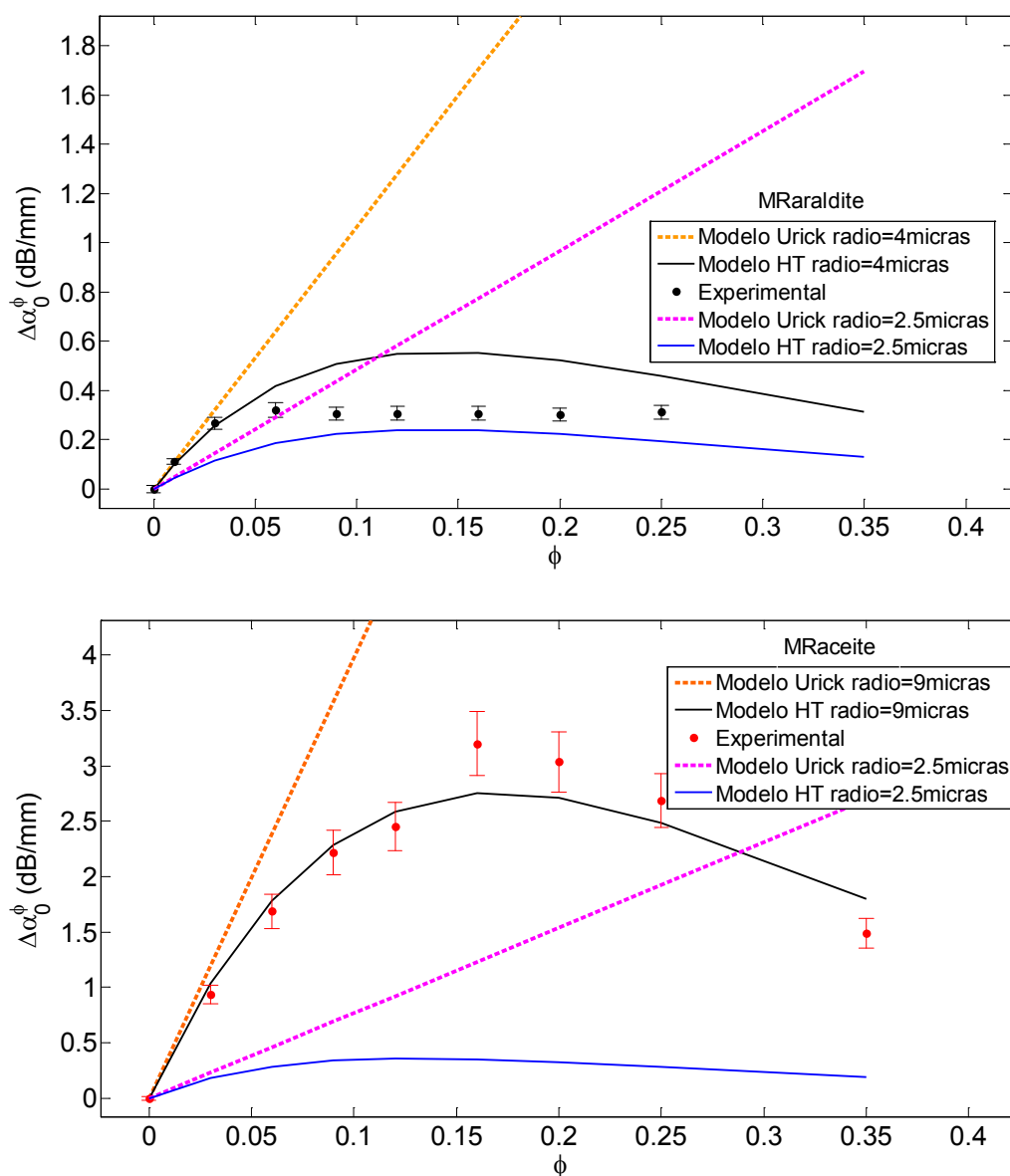


Figura 4.5. Variación de la atenuación experimental (puntos) y la predicción de los modelos teóricos (líneas) para el MRaraldite (figura superior) y MRaceite (figura inferior).

En esta figura, se aprecia que el comportamiento para el cambio de atenuación predicho por los modelos es muy diferente. El modelo de Urick es lineal con la fracción de volumen mientras que el de HT, no. De hecho, mientras que el modelo de HT trabaja en un mayor rango de fracción de volumen, el de Urick sólo sería adecuado aplicarlo a bajas fracciones de volumen. No obstante, hay que indicar que, pese al hipotético rango de validez del modelo de HT, su predicción es también más fiable a bajas fracciones de volumen. Ambos modelos dependen del tamaño de partícula, y gracias a esto, se ha podido acotar el tamaño de partícula que se ha

utilizado en los modelos, pues se recuerda que para el cambio de velocidad, estos modelos no eran tan sensibles.

Para el caso del MRaraldite se ve que la atenuación predicha por el modelo de HT para un tamaño de $2.5 \mu\text{m}$ de radio, está subestimada. Se ha elegido un valor de radio de $4 \mu\text{m}$ como el valor que mejor se ajusta a los valores experimentales porque es el que mejor predice los resultados a bajas fracciones de volumen, aunque lo sobreestime a fracciones de volumen mayores.

Para el caso del MRaceite, hay una gran diferencia en las predicciones dependientes del tamaño de partícula. Para $2.5 \mu\text{m}$ de radio, la atenuación está altamente subestimada siendo un radio de $9 \mu\text{m}$, el valor que mejor ajusta los resultados experimentales. Este valor de radio es también el que mejor ajusta la velocidad – Figura 4.4-.

De estos resultados, se puede concluir que los modelos de Urick y HT predicen el comportamiento cualitativo de nuestros fluidos en función de la fracción de volumen, pero con tamaños de partícula distintos al real. Esto puede ser debido a que, como se muestra en la figura 4.3, las partículas tienden a aglomerarse dando como resultado un tamaño de partícula efectivo mayor. Sin embargo, este tamaño no es nunca tan grande como el que se podría decir que forman las partículas en las imágenes fotográficas tomadas con Araldite curado.

En el caso del MRaraldite, la predicción de los modelos es bastante buena. En velocidad es excelente y en atenuación el ajuste se puede hacer entre 2.5 y 4 micras de radio, lo que es justificable con la segura dispersión en los aglomerados, sobre todo, a baja concentración. En el caso del MRaceite, el hecho de que haya que ajustar con radios tan grandes se justifica por el hecho de que no es realmente un sistema bifásico, lo cual tiene dos posibles consecuencias. De un lado, aparece un efecto dispersivo añadido por la presencia de nanopartículas de silicio y, de otro, la afinidad físico-química entre la grasa y las partículas puede inducir a la aparición de un sistema en suspensión con una campana de dispersión de tamaños ancha. Otra posible fuente de la variación de nuestras predicciones respecto a los resultados experimentales es que, en

este sistema, el líquido base presenta una cierta atenuación, en torno a 0.1dB/mm, mientras que en los modelos se supone que el solvente presenta atenuación nula.

Los modelos aplicados corroboran que nuestro sistema se comporta como una suspensión, aunque predice valores de tamaño de partícula ligeramente superiores a los que en realidad la forman.

4.1.2. Campo magnético aplicado

4.1.2.1. Resultados experimentales

En las tablas 4.3 y 4.4 se presentan las velocidades de propagación, c_B^ϕ , y atenuaciones, α_B^ϕ , de los fluidos MR estudiados en función de la fracción de partículas cuando se les ha aplicado un campo magnético uniforme de 212 mT paralelo al campo acústico. Se presenta también el cambio en velocidad, $\Delta c_B^\phi = c_B^\phi - c_{B=0}^\phi$, y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi = \alpha_B^\phi - \alpha_{B=0}^\phi$, para cada fracción de volumen al aplicar un campo magnético respecto a la situación en la que los fluidos no están sometidos a la acción de dicho campo.

Tabla 4.3. Velocidades, c_B^ϕ (m/s) y atenuaciones absolutas, α_B^ϕ (dB/mm) de los fluidos MRaraldite para varias fracciones de volumen bajo la acción de un campo magnético. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_B^ϕ (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi$ (dB/mm), de dichos fluidos respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado. El subíndice B indica que se ha aplicado un campo magnético.

| ϕ | c_B^ϕ | $e(c_B^\phi)$ | Δc_B^ϕ | $e(\Delta c_B^\phi)$ | α_B^ϕ | $e(\alpha_B^\phi)$ | $\Delta(\alpha_B^\phi)$ | $e(\Delta \alpha_B^\phi)$ |
|--------|------------|---------------|-------------------|----------------------|-----------------|--------------------|-------------------------|---------------------------|
| 0.00 | 1611 | 2 | 0 | 2 | 0.12 | 0.01 | 0.000 | 0.003 |
| 0.01 | 1578 | 2 | 8 | 2 | 0.32 | 0.03 | 0.086 | 0.008 |
| 0.03 | 1529 | 1 | 13 | 1 | 0.58 | 0.06 | 0.20 | 0.02 |
| 0.06 | 1453 | 1 | 15 | 1 | 0.80 | 0.08 | 0.37 | 0.03 |
| 0.09 | 1389 | 2 | 13 | 1 | 0.85 | 0.09 | 0.42 | 0.04 |
| 0.12 | 1324 | 2 | 14 | 1 | 0.90 | 0.09 | 0.47 | 0.04 |
| 0.16 | 1280 | 2 | 14 | 1 | 0.94 | 0.09 | 0.51 | 0.05 |
| 0.20 | 1237 | 2 | 16 | 1 | 1.0 | 0.1 | 0.53 | 0.05 |
| 0.25 | 1204 | 3 | 18 | 1 | 1.0 | 0.1 | 0.55 | 0.05 |
| 0.35 | 1176 | 3 | 25 | 2 | 1.2 | 0.1 | 0.54 | 0.05 |

Tabla 4.4. Velocidades, c_B^ϕ (m/s) y atenuaciones absolutas, α_B^ϕ (dB/mm) de los fluidos MRaceite para varias fracciones de volumen bajo la acción de un campo magnético. Se presentan también las variaciones de velocidad de propagación, Δc_B^ϕ (m/s), y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi$ (dB/mm), de dichos fluidos respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado. El subíndice B indica que se ha aplicado un campo magnético.

| ϕ | c_B^ϕ | $e(c_B^\phi)$ | Δc_B^ϕ | $e(\Delta c_B^\phi)$ | α_B^ϕ | $e(\alpha_B^\phi)$ | $\Delta(\alpha_B^\phi)$ | $e(\Delta \alpha_B^\phi)$ |
|--------|------------|---------------|-------------------|----------------------|-----------------|--------------------|-------------------------|---------------------------|
| 0.00 | 1445 | 1 | 0 | 2 | 0.10 | 0.01 | 0.000 | 0.003 |
| 0.03 | 1376 | 1 | 22 | 2 | 1.1 | 0.1 | 0.047 | 0.004 |
| 0.06 | 1311 | 2 | 32 | 2 | 2.0 | 0.2 | 0.19 | 0.02 |
| 0.09 | 1242 | 2 | 30 | 2 | 2.8 | 0.3 | 0.50 | 0.05 |
| 0.12 | 1175 | 2 | 22 | 2 | 3.3 | 0.3 | 0.72 | 0.06 |
| 0.16 | 1104 | 2 | 14 | 2 | 4.2 | 0.4 | 0.91 | 0.08 |
| 0.20 | 1042 | 3 | 6 | 2 | 3.8 | 0.4 | 0.71 | 0.06 |
| 0.25 | 990 | 3 | 3 | 1 | 3.2 | 0.3 | 0.40 | 0.04 |
| 0.35 | 928 | 3 | 10 | 2 | 1.8 | 0.2 | 0.25 | 0.02 |

Como paralelismo al apartado anterior, se presentan los resultados experimentales de los cambios de velocidad y atenuación, pero esta vez con el campo magnético aplicado paralelo al campo acústico y con una intensidad de 212 mT. Para cada fracción de volumen se muestran los resultados experimentales de la diferencia de velocidad, Δc_B^ϕ , y atenuación, $\Delta \alpha_B^\phi$, entre el fluido magneto-reológico cuando hay campo magnético y cuando éste no se aplica. En la figura 4.6, se pueden ver los resultados para los cambios de velocidad.

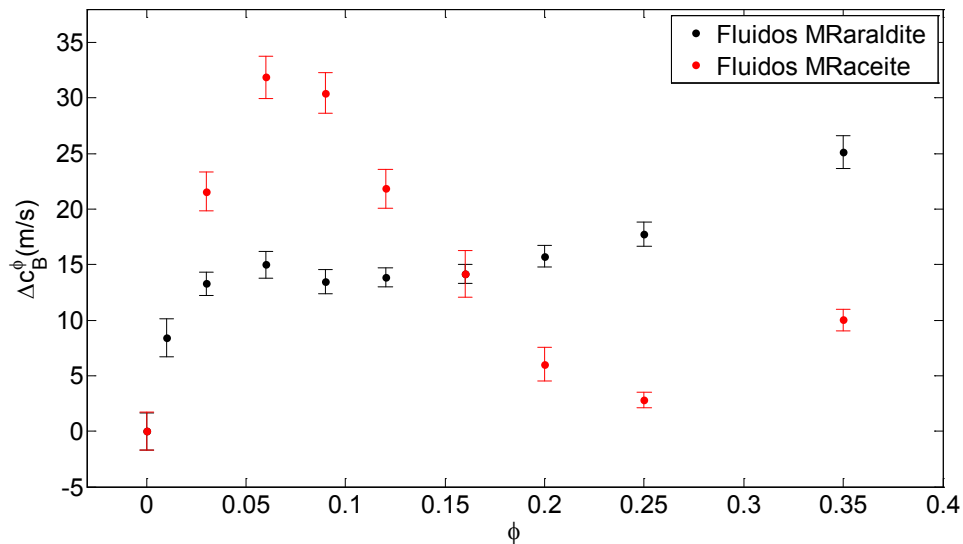


Figura 4.6. Variación de la velocidad de propagación dependiente de la fracción de volumen cuando hay campo magnético aplicado paralelo al campo acústico y cuya intensidad son 212 mT, respecto a la velocidad cuando no hay campo aplicado. Los puntos negros corresponden al MRaraldite, mientras que los puntos rojos corresponden al MRaceite.

El primer efecto reseñable es que el hecho de aplicar un campo magnético paralelo al campo acústico implica siempre un aumento de la velocidad de propagación al compararlo con la velocidad de propagación del fluido MR cuando se encuentra como una suspensión de partículas. Por lo tanto, el reordenamiento de la microestructura lleva implícito un aumento en la velocidad de propagación. Estas variaciones son, sin embargo, un orden de magnitud menor que las que suceden por el aumento de concentración de partículas en el rango estudiado de 0 a 0.4 – ver Figura 4.1- .

Ambos fluidos se comportan de manera similar, aunque los cambios son más abruptos en el caso del fluido MRaceite. Aunque el cambio es siempre positivo, se observa que en ambos casos hay una subida inicial, en el caso del MRaraldite hasta el 0.05 aproximadamente y en el del MRaceite entorno al 0.08. Después hay una bajada más pronunciada en el MRaceite que dura desde el 0.09 hasta el 0.25, mientras que en el MRaraldite esta disminución es muy ligera, prácticamente entre el 0.06 y el 0.09. Después se produce un aumento del cambio de velocidad siendo más notable esta vez en el MRaraldite, desde el 0.09 hasta el 0.35, mientras que el MRaceite corresponde al rango del 0.25 al 0.35.

En este rango de fracciones de volumen, el máximo cambio en la velocidad de propagación ocurre entre el 0.06 y el 0.09 en el caso del fluido MRaceite, mientras que el mayor cambio en los fluidos MRaraldite corresponde al 0.35. Por esta razón en el caso del MRaceite será este fluido al 0.09 de hierro el que resultará elegido como fluido de estudio. En posteriores secciones, se le denominará MRaceite 9%. Para el MRaraldite, dado que la fracción de volumen de 0.35 dificulta la síntesis del fluido y su manipulación, se utilizará un fluido cuya fracción de volumen es del 0.25; en este caso se le denominará MRaraldite 25%.

El efecto del cambio de la microestructura al aplicar un campo magnético externo en función de la fracción de volumen es claro, pues, para diferente fracción de volumen, aparecen diferentes tipos de microestructuras. Aunque los cambios son pequeños comparados con los que se producen por las variaciones de velocidad en función del aumento de la fracción de volumen de partículas, figura 4.1; el efecto es, en cambio, cualitativamente significativo.

Como se comentó en el capítulo de introducción, existe un trabajo en el que se ha estudiado en cierta medida el efecto de la fracción de volumen en los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético sobre la variación de la velocidad de propagación (Bramantya *et al.*, 2011b). En este caso son tres fluidos MR comerciales cuyos solventes son hidrocarburos y con fracciones de volumen de hierro de 0.22, 0.32 y 0.40. Su sistema posee unas dimensiones de 32 x32 mm sin que se especifique la altura. Miden a 25°C y a una frecuencia de 2 MHz.

En dicho trabajo, de forma similar al nuestro, sin campo magnético aplicado la velocidad disminuye si aumenta la fracción de volumen. También bajo la aplicación de un campo magnético en la misma dirección que el campo acústico respecto a la situación en la que no hay campo aplicado, el cambio en velocidad es mayor para una fracción de 0.40 que para una fracción de volumen de 0.32, observándose el menor cambio para el fluido al 0.22. Sin embargo, a diferencia de las medidas realizadas en esta Tesis, para una concentración moderada de 0.22, el cambio de velocidad que obtienen los autores en ese trabajo es negativo, siendo de -1%. Este cambio de signo no aparece en las concentraciones más altas. Este comportamiento lo consideramos anómalo, pues en nuestro caso, en similares condiciones, siempre se obtiene un cambio de velocidad positivo para todo el rango de fracciones de volumen estudiado y, además, los modelos teóricos para nuestros fluidos estudiados nunca muestran ese cambio de signo.

A continuación se detalla el estudio experimental sobre la atenuación. En la figura 4.7, se pueden ver los resultados para los cambios de atenuación cuando se compara la atenuación sin campo aplicado y con campo aplicado uniforme de 212 mT en la dirección paralela al campo acústico.

Se puede resaltar que como tendencia común, la aplicación de un campo magnético paralelo al campo acústico provoca un aumento en la atenuación en ambos casos.

En el caso del MRaceite, se observa que hay un máximo pronunciado en 0.16, llegándose a alcanzar un cambio de casi 1 dB/mm. En la medida del MRaraldite, la tendencia es diferente,

pues no aparece un máximo claro, mostrando un cambio de pendiente en el entorno de 0.06, aumentando después de manera suave alcanzándose casi un cambio de 0.6 dB/mm.

En cuanto a los cambios relativos, sin embargo, se puede apreciar que el cambio es mucho mayor en el MRaraldite, pues prácticamente la atenuación se duplica, mientras que en el caso del MRaceite ese aumento es del orden de un tercio.

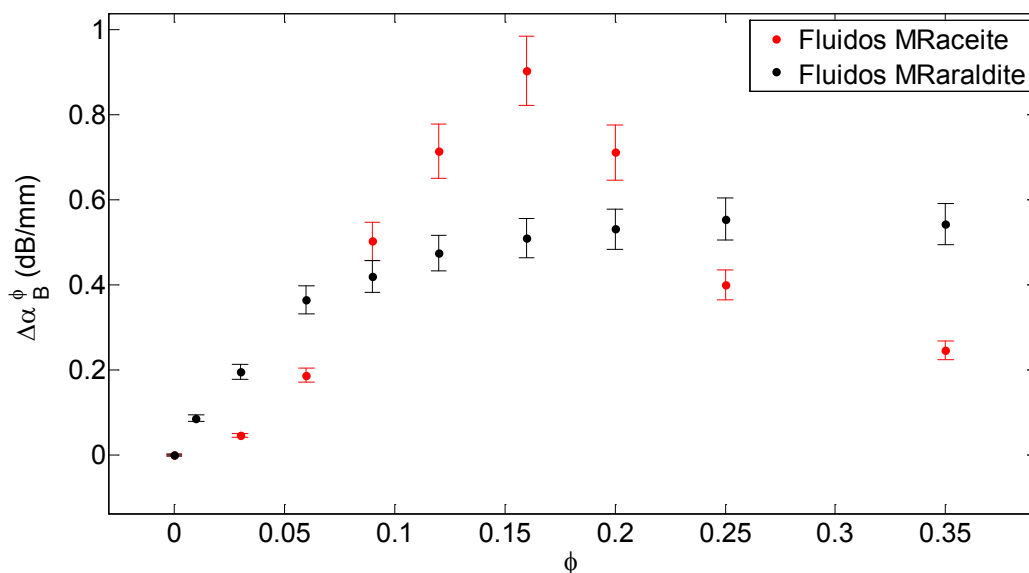


Figura 4.7. Variación de atenuación al aplicar un campo magnético paralelo al campo acústico con una intensidad de 212 mT respecto a la atenuación cuando no hay campo magnético aplicado. Los puntos negros corresponden a las diferentes suspensiones MRaraldite, mientras que los rojos corresponden a las diferentes suspensiones MRaceite.

Según lo anterior, los cambios de atenuación sugieren que, al menos, hay una consolidación de una estructura resonante en el caso del MRaceite en 0.16 al aplicar el campo magnético, mientras que en el caso del MRaraldite, esta estructura es más débil y se configura en el entorno de 0.06.

Si se compara la figura 4.7, donde aparece el cambio de atenuación al aplicar un campo magnético respecto a cuando no lo hay, y la figura 4.2, cuando no se aplica campo; se puede concluir que los comportamientos son similares en función de la fracción de volumen. Aunque cuantitativamente los resultados son diferentes, cualitativamente se nota que el comportamiento del MRaceite es más abrupto en función de la concentración de partículas,

mientras que en el MRaraldite es más suave. Esto sugiere que la reordenación de partículas que provoca un cambio en la microestructura tiene mucha importancia en el cambio de atenuación, pues llega a ser de un 150% en algunos casos, lo cual es significativamente mayor que en el caso de la velocidad en el que no supera el 3%. Sin embargo, la tendencia de la atenuación en función de la fracción de volumen es similar cuando hay campo magnético aplicado y cuando no, lo cual pone de relieve que el efecto de aumentar la fracción de volumen de partículas continúa siendo un factor dominante sobre este parámetro acústico.

4.1.2.2. Microestructura

Cuando se aplica el campo magnético aparece una dirección privilegiada que es la dirección de las líneas del campo magnético, en nuestro caso, el *eje x* según la figura 4.8. Para cada fotografía de cada muestra se dispondrá de dos puntos de observación. El primero (1) es perpendicular a las líneas de campo magnético aplicado (observación según el *eje y*) y el segundo (2) corresponde a la observación paralela a las líneas de campo (según el *eje x*).

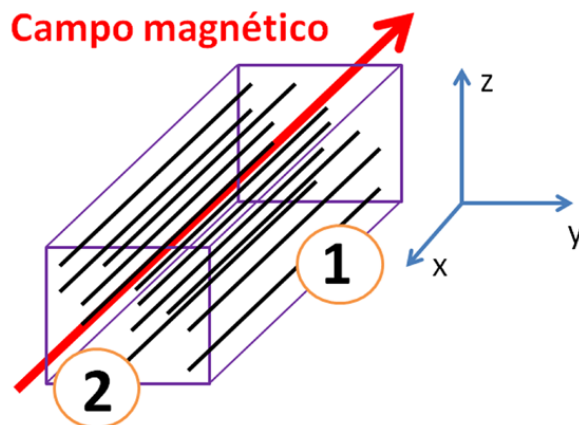


Figura 4.8. Esquema de las dos posiciones diferentes de observación. El (1) es la vista perpendicular a las líneas de campo magnético (observación según el *eje y*), mientras que el (2) corresponde a la observación paralela a las líneas de campo (según el *eje x*).

En la figura 4.9 se presentan las fotografías tomadas de la microestructura paralelas al campo magnético aplicado para las diferentes fracciones de volumen.

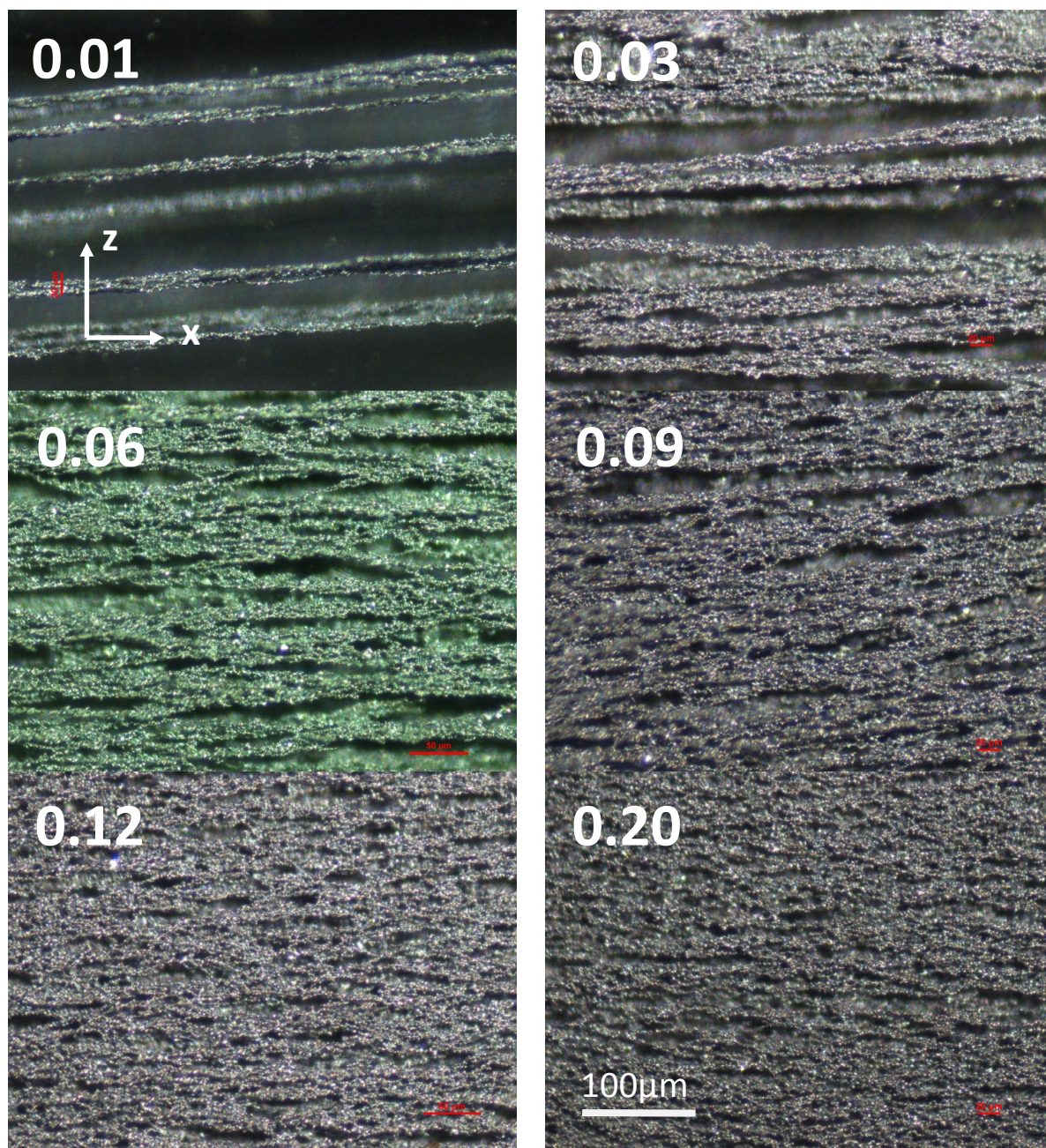


Figura 4.9. Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando hay campo magnético aplicado desde el punto de observación (1), según el *eje y*. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala blanca equivale a $100\mu m$.

De estas seis figuras, desde el punto de observación (1) se puede remarcar que, a diferencia de cuando no hay campo magnético aplicado (figura 4.3), la microestructura no es la misma. Es decir, al aplicar el campo magnético, la microestructura va a depender de la fracción

de volumen que se utilice. Así, se podrían diferenciar dos grandes grupos. El primero que será llamado de baja fracción de volumen y que corresponde al 0.01 y al 0.03. Y el segundo, de altas fracciones de volumen, que se corresponde con el 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. Realmente el límite no es del todo claro, pero pasamos a explicar el criterio de esta división.

Se considera, que al aplicar el campo externo, cuando la fracción es del 0.01 y del 0.03, la microestructura formada es algo parecido a una suspensión de fibras. En el caso del 0.01, queda una estructura bastante bien definida. Al observar con detalle, se ve cómo se han unido cadenas alargadas de partículas para generar estructuras más gruesas, columnas. Esta fotografía es bastante representativa del sistema para esta fracción de volumen, pues presenta polidispersión en el tamaño de las estructuras, siendo algunas más anchas que otras, e, incluso, se puede ver cómo dos cadenas se unen para formar parte de una estructura. Las formas podrían considerarse como agujas o cilindros, pero su diámetro no es uniforme y su superficie es algo irregular. Se aprecian diámetros de las fibras desde unas 7 micras hasta unas 16 micras. Los tamaños de las estructuras serán visualizados mejor cuando la observación se haga desde el *eje x*, figura 4.10, pues hay un mayor número de estructuras. La longitud de las estructuras es un parámetro complicado de obtener a partir de las fotografías realizadas. En primer lugar, se aprecia que, con este objetivo, la escala no es suficiente. Así pues, para poder evaluarlo se han realizado observaciones con otros objetivos más pequeños, e incluso, se ha hecho uso de la escala de la plataforma del microscopio. También hay que tener presente que, aunque en esta fotografía no es posible verlo, en los laterales de la muestra que están más cercanos a la fuente de campo magnético también aparecen estructuras más cortas que no han interactuado o lo han hecho en menor medida con otras estructuras cercanas. Teniendo en cuenta todo lo dicho, se podría estimar que el límite inferior en el tamaño de la longitud de las estructuras es de unas 500 micras. El límite superior de la longitud de las estructuras se dejará como el tamaño de la celda de medida, 6 mm. Debido a la polidispersión de tamaños e interacciones entre fibras, es difícil obtener un tamaño promedio. Aunque en el caso de la fracción de volumen de 0.03 ya no es tan claro que se forme una suspensión de fibras, el medio puede aún considerarse como tal, porque, como se puede apreciar en la fotografía, se pueden visualizar diferentes planos de estructuras que se encuentran separados una cierta distancia, siendo las oquedades entre

fibras dentro de un mismo plano grandes y abiertas. Aún así, es difícil definir una unidad estructural para este tipo de fracción de volumen. Aparecen interacciones entre las estructuras y esto da lugar a que haya más polidispersión de tamaños. Parece que las interacciones entre estructuras se producen sin que cambie la orientación de las mismas respecto al campo magnético, lo que favorece que se aumente el contacto de las estructuras a lo largo de su longitud. Esto propicia que los diámetros de las estructuras aumenten e, incluso, podrían variar la longitud en cierta medida. Sin embargo y de acuerdo con las fotografías, parece que predomina el primer efecto sobre el segundo. Pese a que el diámetro de las estructuras se apreciará mejor en la figura 4.10, en concreto en esta foto se puede observar cómo se han formado fibras con diámetros variables, de unas 9 micras, 18 micras o, incluso, estructuras más gruesas de unas 28 micras. Sin embargo, cuando las estructuras se hacen gruesas debido a la interacción de varias cadenas, es difícil decidir si se debe considerar como una estructura gruesa o como varias estructuras que se encuentran próximas. En cuanto a las longitudes, pasa algo similar al caso del 0.01. Tampoco es fácil saber cuál podría ser su dimensión, aunque, en principio, parece que los límites en tamaño son similares a los de la fracción de volumen de 0.01. Sin embargo, es razonable que las estructuras tengan el límite inferior en torno a las 500 micras debido a la interacción comentada anteriormente, que favorece el aumento del diámetro de las estructuras frente a la disminución del tamaño de las mismas. De nuevo, el límite superior se establecerá como 6 mm porque es la frontera física.

Para el resto de fracciones de volumen, se considera que, debido a interacciones entre las formaciones, la estructura es más compleja dejando de ser fibras y formando una estructura porosa orientada. En estas estructuras se observan un mayor número de entrelazamientos entre las fibras, generándose más huecos, más cerrados y más pequeños que en los casos de fracción de volumen más baja. Podría decirse que el criterio para definir el límite entre un tipo de estructuras y las otras, aunque sea algo difuso, es su apariencia como material poroso.

En la figura 4.10, se presentan las fotografías de la microestructura de las muestras de MRaraldite solidificado bajo la acción de un campo magnético aplicado, desde una perspectiva paralela a las líneas de campo (2), según *eje x*.

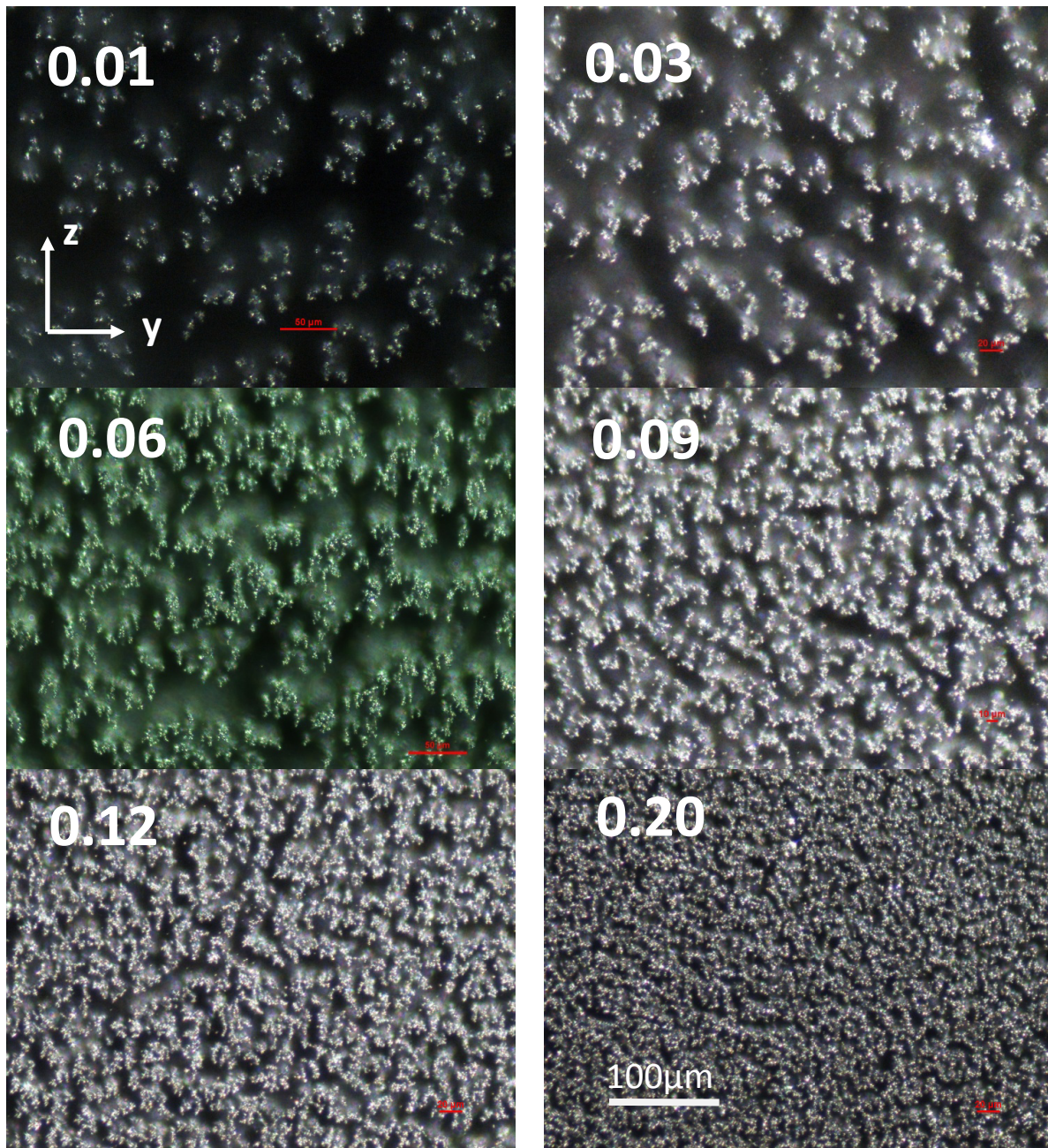


Figura 4.10. Fotografías de la microestructura de las diferentes muestras de MRaraldite sólido para diferentes fracciones de volumen cuando hay campo magnético aplicado desde el punto de observación (2), observación según el *eje x*. Las fracciones de volumen de cada muestra aparecen en la parte superior izquierda en blanco siendo estas: 0.01, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12 y 0.20. La escala blanca corresponde a $100\mu m$.

En esta figura se muestra cómo ninguna de las estructuras está ordenada, sino que están distribuidas de manera aleatoria en este plano. Sin embargo, a partir de estas fotos se pueden

apreciar diferencias que permiten delimitar las dos regiones de “bajas” y “altas” fracciones de volumen.

Para los casos de 0.01 y 0.03 vemos que las estructuras formadas son bastante puntuales, y aun habiendo agregados de partículas, por lo general no aparecen interacciones en la dirección perpendicular. Se podría decir que las estructuras están bastante bien definidas, aunque presentan una forma irregular debido a que están formadas por conexiones de partículas/cadenas y están aisladas unas de otras, resultando más gruesas en el caso del 0.03. Respecto a los tamaños se aprecia que los diámetros son variables. Para el caso de la fracción de volumen de 0.01 se puede proponer un rango de tamaños de entre 6 y 16 micras; no obstante, también aparecen algunas estructuras mayores de 23 o incluso casi 30 micras, aunque son minoría. Para el caso del 0.03 se aprecian estructuras de tamaños más variables, pudiendo abarcar un rango de entre 10 y 24 micras. Se encuentran también estructuras de 7 micras o superiores a 30 micras, aunque son mucho menos habituales.

Para el resto de fracciones de volumen se pueden encontrar partículas en la perpendicular de la fibra formada, en el *eje z*. Para el 0.06 empieza a ser más evidente, mientras que para el resto se observa nítidamente que, en lugar de presentarse como estructuras puntuales, son estructuras que interaccionan entre sí, dando lugar a formaciones más alargadas y en cierto modo algo sinuosas, de manera que no están aisladas unas de otras. Esto da lugar a que surjan interacciones entre las estructuras formadas a lo largo de diferentes planos de fibras.

De estas fotos se puede considerar que, para bajas fracciones de volumen, las partículas forman suspensiones de fibras, mientras que para fracciones de volumen más altas, las estructuras son más complejas. Este último tipo de estructuras comienzan a asemejarse a un material poroso en el que aparecen interacciones, tanto en la dirección paralela como en la perpendicular al campo magnético. Al estar en el régimen de bajas fracciones de volumen, se pueden aplicar modelos sin tener que cambiar el tamaño de partícula por la aparición de aglomerados y otras estructuras por el propio hecho del aumento de la concentración de partículas.

4.1.2.3. Modelos teóricos

De acuerdo con la información obtenida a partir de las fotos de la microestructura, que además se encuentran en concordancia con las referencias bibliográficas existentes, en este apartado se analizan los resultados experimentales a la luz de los modelos de propagación acústica dependiente de la microestructura.

Modelo Ahuja

El modelo de Ahuja es válido para fracciones de volumen bajas donde se puede considerar que el sistema se comporta como una suspensión de fibras orientadas. Esto es cierto cuanto menor sea la fracción de volumen y campo aplicado. En nuestro caso se ha aplicado hasta el 0.03 por lo observado en las fotografías, donde parece que el comportamiento es el indicado anteriormente.

En este modelo (ecuaciones 2.24-2.31), un factor importante es el tamaño de las fibras. Teniendo en cuenta los valores obtenidos por observación directa de las fotografías de las dimensiones de las estructuras, la validación del modelo se realizará ajustando la velocidad de propagación predicha por éste a la velocidad experimental, manteniendo un tamaño de la fibra constante -el diámetro, a , o la longitud, b - . Como resultado se obtendrá el otro parámetro de la dimensión que no ha sido ajustado, la relación de aspecto, y la variación de la atenuación obtenida como la diferencia entre la atenuación del fluido MR bajo la acción del campo magnético y la atenuación del solvente, $\Delta\alpha_{Ah} = \alpha_B^\phi - \alpha_0^{\phi=0}$. Estos resultados para el MRaraldite y el MRaceite se muestran en la tabla 4.5. En esta tabla se presentan en negrita las magnitudes obtenidas a partir de medidas experimentales o fijadas según algún otro criterio y en tipos normales, los valores que el modelo proporciona. Cuando se fija el diámetro (en negrita) según el intervalo de valores predominantes en el sistema, se obtiene un rango de longitudes de las fibras. Cuando la longitud se fija (en negrita), se hace entre un mínimo obtenido a través de las fotografías y un máximo impuesto por las dimensiones de la cubeta de medida. Para el MRaceite seguiremos el mismo procedimiento explicado anteriormente pero considerando que las dimensiones observadas en las muestras de MRaraldite son representativas también para el

caso del MRaceite. Estas dimensiones no tendrían por qué ser iguales, pero sí deberían ser similares. Se ha considerado el criterio de ajustar la velocidad y no la atenuación por ser el primero más preciso.

Para el MRaraldite se han estudiado los fluidos con fracciones de volumen de 0.01 y 0.03. La velocidad de propagación experimental para el 0.01 es de 1578 ± 2 m/s y para el 0.03 de 1529 ± 1 m/s. El cambio de atenuación experimental comparando con la atenuación del solvente es de 0.20 ± 0.03 dB/mm y de 0.46 ± 0.06 dB/mm respectivamente. La viscosidad del fluido base es de 1 Pa.s.

Para el MRaceite se ha usado un fluido cuya fracción de volumen es de 0.03 suspendido en un fluido de viscosidad de 1 Pa.s. La velocidad de propagación y el cambio en la atenuación experimental respecto a la atenuación del solvente es de 1376 ± 1 m/s y 1.0 ± 0.1 dB/mm respectivamente.

Tabla 4.5 Predicción de las dimensiones de las fibras formadas, a y b , la relación de aspecto, a/b , y el cambio de atenuación con relación a la del solvente, $\Delta\alpha_{Ah}$, obtenido mediante el modelo de Ahuja para el MRaraldite y MRaceite. Los valores fijados se resaltarán en negrita mientras que los obtenidos por el ajuste permanecen con tipo de letra normal.

| ϕ | a (μm) | b (μm) | b/a | $\Delta\alpha_{Ah}$ (dB / mm) |
|-------------------|-----------------|-----------------|--------|-------------------------------|
| <i>MRaraldite</i> | | | | |
| 0.01 | 6-16 | 80-6000 | 13-375 | 0.16-0.10 |
| 0.03 | 10-24 | 120-6000 | 12-250 | 0.69-0.44 |
| 0.01 | 7.2-15.2 | 500-6000 | 69-395 | 0.12-0.09 |
| 0.03 | 11.3-24.4 | 500-6000 | 44-246 | 0.55-0.44 |
| <i>MRaceite</i> | | | | |
| 0.03 | 10-24 | 150-1640 | 15-68 | 0.9-0.8 |
| 0.03 | 17.6-37.6 | 500-6000 | 28-160 | 0.9-0.7 |

De esta tabla se pueden obtener las siguientes conclusiones:

- El modelo es mucho más sensible al diámetro de las fibras, siendo muy poco sensible a la longitud. Conocido el valor del diámetro, no es posible conocer la longitud con precisión, mientras que lo contrario sí, si se conoce la longitud se podría conocer con precisión el diámetro.

- Un aumento del diámetro de la fibra implica un aumento de su longitud y un aumento de la relación de aspecto.
- Una fracción de volumen mayor implica que las estructuras sean más anchas y que la relación de aspecto sea más pequeña.
- Al aumentar la relación de aspecto, disminuye la atenuación predicha.
- Al aumentar la fracción de volumen, aumenta la atenuación.
- El valor del cambio de atenuación con relación al del solvente predicho por el modelo coincide satisfactoriamente con el valor experimental.

Pese a la polidispersión en los tamaños mostrados en las fotografías de la microestructura de estas muestras, se aprecia que este modelo predice de una manera satisfactoria el diámetro de las estructuras cuando se fija la longitud de las mismas (en **negrita**), y no sólo predice el orden de magnitud, sino que también lo hace cuantitativamente de manera correcta, tanto para el diámetro como para la variación de atenuación al comparar con los valores experimentales. Sin embargo, se observa cómo, al fijar el diámetro (en **negrita**), se obtiene un rango de posibles longitudes muy grande, estando incluso fuera de los límites observados en las fotografías.

Si se comparan las dimensiones predichas por el modelo para los dos fluidos, MRaraldite y MRaceite, bajo las mismas condiciones, se predicen estructuras muy similares, pese a que los fluidos sean diferentes. Esto es coherente con lo que debería pasar, pues, aunque el solvente sea diferente, la estructura está altamente relacionada con el campo magnético aplicado que ha sido similar.

La disminución de la relación de aspecto al aumentar la fracción de volumen se puede explicar a través de la figura 4.9. Si se compara la estructura para el 0.01 y el 0.03, se ve que en esta última empiezan a aparecer algunas interacciones fuera del *eje x* que o va a permitir la unión de cadenas para formar estructuras más gruesas, o, si forman un enlace entre cadenas, elásticamente podría verse traducido en que la fibra se acorta hasta donde haya uno de esos enlaces entre cadenas.

Por un lado, este modelo nos permite obtener una información cualitativa sobre la estructura formada e, incluso, predice correctamente el orden de magnitud de los tamaños de las estructuras. Esto se puede apreciar al comparar los resultados de las fotos con los resultados de las tablas donde se fijan como límites las longitudes, b , y se obtienen los diámetros. Las estructuras formadas poseen diámetros del orden de las decenas de micras y se aprecia cómo para fracciones de volumen mayores se predicen estructuras con mayor diámetro.

Por otro lado, el modelo también predice bastante correctamente el cambio en la atenuación destacando la importancia que tiene en este parámetro la forma de las inclusiones, en especial el diámetro.

En consecuencia, este modelo podría explicar que para bajas fracciones de volumen los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético aplicado se comportan como una suspensión de fibras con tamaños variables, del orden de las micras, que se encuentran aproximadamente paralelas al campo acústico. No obstante, es preciso considerar que en una muestra real la estructura es más compleja al presentar una distribución de tamaños de las estructuras.

Modelo de Biot

Como se explicó en el capítulo 2, el modelo de Biot, ecuaciones (2.32-2.44), es uno de los modelos más comúnmente utilizado para describir las propiedades acústicas de materiales porosos. Para ser aplicado, es preciso obtener varios parámetros que “a priori” son desconocidos mediante el ajuste del modelo a los datos experimentales. En el caso de la atenuación, la parte imaginaria del vector de onda depende de un factor adicional denominado resistencia al flujo que depende de la viscosidad del fluido, de la porosidad y de la permeabilidad de la estructura que es desconocida. Por esta razón, se optó por analizar en primera instancia la adecuación del modelo a la descripción de la velocidad de propagación de la onda.

En la figura 4.11, se presenta la predicción del modelo de Biot para la velocidad de propagación longitudinal de los dos fluidos MR de estudio junto a los valores de la velocidad absoluta experimental cuando hay un campo magnético aplicado sobre el fluido.

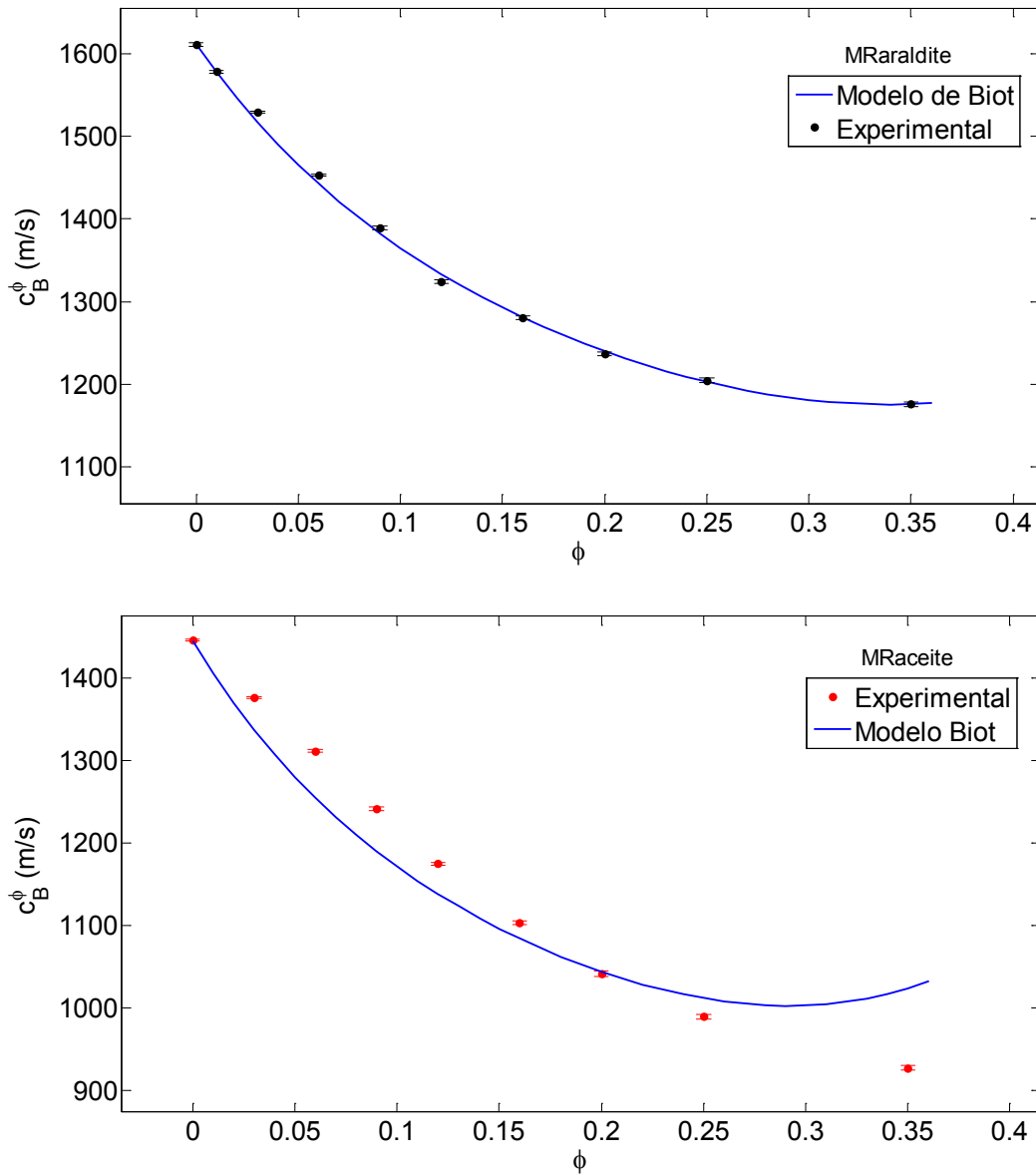


Figura 4.11. La línea azul muestra la predicción del modelo de Biot para la velocidad absoluta de los fluidos MRaraldite (arriba) y MRaceite (abajo) cuando se aplica un campo magnético paralelo a la propagación ultrasónica. Los puntos discretos son los resultados experimentales de la velocidad de propagación para cada fluido.

En el caso del MRaraldite (parte superior de la figura 4.11) se aprecia que el modelo predice la tendencia a disminuir la velocidad con la fracción de volumen, de manera similar al resultado obtenido a partir de los modelos de suspensiones de Urlick y Harker & Temple.

En el caso del MRaceite, figura 4.11 inferior, se observa que se predice la disminución de la velocidad con la fracción de volumen, aunque se comprueba que a partir del 0.3 la velocidad

tiende a aumentar de nuevo. Se ve claramente que por debajo del 0.20 el modelo subestima el valor de la velocidad, mientras que por encima del 0.20 lo sobreestima.

Las propiedades de la estructura formada, como se indicó en el capítulo 2, deben ser inferidas por medio de un ajuste a los valores experimentales. Estos parámetros son m , ecuación 2.40, y s , ecuación 2.43. Ambos están relacionados con las propiedades mecánicas y con la tortuosidad de la estructura formada, respectivamente. Según el ajuste de estos parámetros a nuestros resultados experimentales, los valores obtenidos para el coeficiente de compresibilidad volumétrico y la tortuosidad no son realistas si se considera un material poroso consolidado. Para el MRaraldite la tortuosidad variaría entre 8 para 0.01 y 42 para el 0.35 y el módulo de compresibilidad volumétrico desde 10^3 Pa al 0.09 a 10^8 Pa al 0.35. Para el MRaceite, la tortuosidad varía desde 7 para 0.09 a 36 para el 0.35, y el módulo de compresibilidad volumétrico, de 10^4 Pa al 0.09 a 10^8 Pa al 0.35. Estos valores harían que no tuviera mucho sentido el modelo salvo que se considerasen como límites de una tendencia. Cuando las tortuosidades tienden a ser muy altas y las compresibilidades muy bajas, el medio ha de considerarse como un sistema más similar a una suspensión que a un medio poroso (Johnson *et al.*, 1982). En otras palabras, cuando la tortuosidad es muy alta se puede entender que hay un acoplamiento muy fuerte entre partícula y solvente y, si los módulos de compresibilidad son bajos, implica que la interacción entre partículas es débil, lo cual apunta más al comportamiento de una suspensión, aunque sea concentrada, que a un medio poroso donde exista una “matriz sólida”.

Por tanto, podemos concluir que a altas fracciones de volumen, a pesar de que las fotos vistas en las figuras 4.9 y 4.10 sugieran que las estructuras pudieran tener una fuerte interconexión elástica, realmente estas formaciones no son tan rígidas y su comportamiento es el de un material poco consolidado.

Esta interpretación está de acuerdo con el trabajo de Johnson y Plona (Johnson *et al.*, 1982), en el cual se presenta la aplicación del modelo de Biot isótropo para esferas de vidrio suspendidas en agua, tanto cuando están sin consolidar ($K_b = \mu_b = 0$) como cuando están consolidadas (tras sufrir un proceso térmico que provoca la fundición de las partes del vidrio

que están en contacto). El sistema estudiado es una suspensión de esferas de cristal con una fracción de volumen de 0.62 cuyo solvente es agua. Cuando el material está consolidado, la velocidad de propagación longitudinal es de 2810 m/s y, además, aparecen otros dos modos de propagación: un modo longitudinal lento de menor velocidad (960 m/s) y otro transversal (1410 m/s). Sin embargo, cuando se considera que el material no está consolidado, sólo aparece un modo de propagación longitudinal con una velocidad más próxima al fluido que al vidrio, en torno a los 1780 m/s.

En la figura 4.12, se presenta otro ejemplo de esta diferencia entre un material consolidado y un material no consolidado. En este caso es la variación de la velocidad de propagación para una muestra ósea (Williams, 1992).

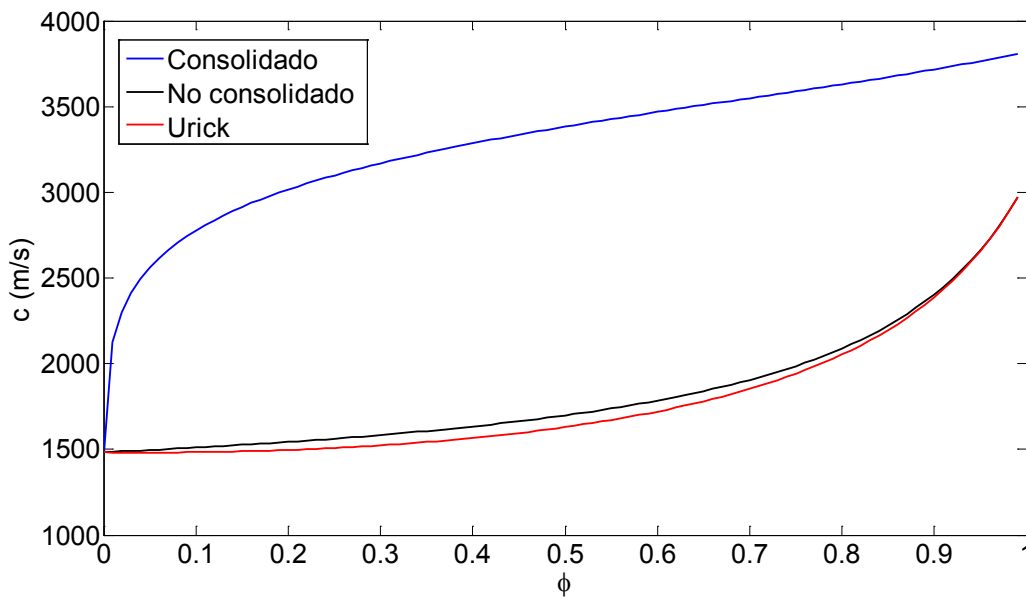


Figura 4.12. Predicción teórica de la velocidad absoluta según el modelo de Biot para huesos que no son compactos sino que presentan una apariencia de material reticulado o espongiiforme (Williams, 1992). La línea azul representa el comportamiento cuando se considera que el material está consolidado, la línea negra cuando ese mismo material no está consolidado y la línea roja representa el modelo de Urick.

Cuando el material sólido está formando una estructura consolidada, las velocidades son altas, típicas de las de un material sólido, o algo inferiores, dependiendo de la fracción de volumen; pero existe una gran diferencia al comparar con los valores predichos por el modelo

cuando el material no está consolidado, donde las velocidades están más cercanas, aunque ligeramente superiores, a las de una suspensión.

De acuerdo con todo ello, se puede decir que en los fluidos MR, cuando el campo magnético está aplicado, si bien el material se ordena de acuerdo con dicho campo, las estructuras formadas no están fuertemente consolidadas como demuestra el valor de las velocidades de propagación obtenidas experimentalmente que son más similares a las de una suspensión.

Esto, además, estaría de acuerdo con el hecho de que no se hayan visto otros modos de propagación como son el longitudinal lento y el transversal, los cuales aparecen cuando la estructura está bien consolidada (Johnson *et al.*, 1982).

Modelo Micromecánico

Del ajuste de los resultados experimentales con el modelo micromecánico para la velocidad de propagación, ecuaciones (2.45-2.47), se pueden obtener las dimensiones de las estructuras formadas y, por lo tanto, la tendencia de la relación de aspecto en función de la fracción de volumen. En la tabla 4.6 se presenta la variación en la velocidad de propagación experimental, $\Delta c_B^\phi = c_B^\phi - c_{B=0}^\phi$, y la obtenida mediante el modelo micromecánico, $\Delta c_{B\text{mod}}^\phi$, cuando se comparan las situaciones en las que los fluidos MRaceite y MRaraldite se encuentran bajo la acción de un campo magnético respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado. A partir de estas variaciones de velocidad teóricas que mejor ajustan a los resultados experimentales, se han obtenido las relaciones de aspecto de las posibles estructuras formadas, siendo esta magnitud la que se muestra en la tabla. Los resultados del modelo micromecánico para los cambios de velocidad no han sido ajustados a la unidad, sino que se ha obtenido una relación de ajuste aproximada que nos proporcione la tendencia del comportamiento.

Tabla 4.6. Resultados experimentales, Δc_B^ϕ (m/s), y teóricos, $\Delta c_{B\text{mod}}^\phi$ (m/s), para el MRaceite y MRaraldite del cambio en la velocidad de propagación al comparar dicha magnitud bajo la acción de un campo aplicado con el valor obtenido cuando no hay campo magnético aplicado para distintas fracciones de volumen de partículas. La relación de aspecto corresponde a las estructuras en forma de fibras de hierro generadas por el campo magnético aplicado obtenidas mediante el modelo micromecánico. En negrita se presentan los resultados obtenidos por el modelo.

| | MRaraldite | | | MRaceite | | |
|--------|-------------------|-------------------------------|---------------------|-------------------|-------------------------------|---------------------|
| ϕ | Δc_B^ϕ | $\Delta c_{B\text{mod}}^\phi$ | Relación de aspecto | Δc_B^ϕ | $\Delta c_{B\text{mod}}^\phi$ | Relación de aspecto |
| 0.01 | 8 | 10 | 401 | - | - | - |
| 0.03 | 13 | 10 | 201 | 22 | 20 | 901 |
| 0.06 | 15 | 18 | 201 | 32 | 30 | 801 |
| 0.09 | 13 | 8 | 101 | 30 | 34 | 701 |
| 0.12 | 14 | 10 | 101 | 22 | 24 | 501 |
| 0.16 | 14 | 13 | 101 | 14 | 12 | 301 |
| 0.20 | 16 | 16 | 101 | 6 | 7 | 201 |
| 0.25 | 18 | 19 | 101 | 3 | 3 | 101 |
| 0.35 | 25 | 26 | 101 | 10 | 11 | 201 |

En ambos casos, el modelo micromecánico predice una disminución de la relación de aspecto con el aumento de la fracción de volumen como puede apreciarse en las fotografías de las figuras 4.9 y 4.10. Aunque para el caso del MRaceite al 35% predice un aumento de la relación de aspecto respecto a la fracción del 25%.

De acuerdo con estos resultados, se puede decir que este modelo considera las inclusiones en el medio fluido como si fueran estructuras fibrilares de diferentes tamaños.

Para el caso del MRaceite, se predicen relaciones de aspecto muy grandes, especialmente para fracciones de volumen bajas, mientras que para el caso del MRaraldite, las relaciones de aspecto predichas son más moderadas y resulta característico que la mayor parte de ellas se encuentren en torno a la relación de aspecto 101, dando pie a que la estructura formada varía poco a diferencia de la estructura predicha para el MRaceite.

Se podría entender que la disminución de la relación de aspecto desde el punto de vista elástico es debido a la aparición de estructuras en la dirección del *eje z*, cortando la uniformidad y continuidad de las fibras y, por lo tanto, haciéndolas más pequeñas en la dirección paralela al campo magnético. Esta conclusión estaría en consonancia con la misma idea obtenida a partir de los resultados de las predicciones teóricas por el modelo de Ahuja.

Este modelo, pese a ser complejo, no refleja la realidad de las estructuras que se forman, según se puede apreciar en las figuras 4.9 y 4.10. Aunque en las fotografías se pueden observar estructuras fibrosas en la dirección horizontal, *eje x*, junto con otras estructuras fibrosas en la dirección perpendicular, *eje z*, o con un cierto ángulo; sería difícil poder describir la estructura formada tan sólo como fibras colocadas en diferentes direcciones, ya que también se aprecian en dichas figuras estructuras más gruesas, huecos irregulares... Sin embargo, este modelo sí predice cómo al aumentar la fracción de volumen se produce una reducción de la relación de aspecto de las estructuras, posiblemente debido a esas estructuras perpendiculares que aparecen en las fotografías.

Modelo de Reuss y Voigt modificado

Hasta ahora se ha propuesto que, a bajas fracciones de volumen, un fluido MR cuando se le aplica un campo magnético se comporta como una suspensión de fibras orientadas paralelas al campo magnético y al campo acústico.

Cuando se aumenta la fracción de volumen, a partir del modelo de Biot, se ha inferido que las estructuras formadas no están fuertemente consolidadas; de ahí las bajas velocidades experimentales medidas, que son más parecidas a las de una suspensión que a las de un sólido. Por último, el modelo micromecánico explica que las estructuras formadas tengan una relación de aspecto menor al aumentar la fracción de volumen.

De acuerdo con esto y según las ecuaciones (2.50-2.54), se pretende modelar el sistema como una suspensión, pero en la que existen contribuciones de estructuras, tanto paralelas como perpendiculares a la dirección de propagación del campo acústico. Estas contribuciones serán mayores o menores según la fracción de volumen. Así pues, tendremos estructuras de fase sólida en paralelo y en serie con una fase “suspensión”.

Se considerará que la unión de dos partículas orientadas no da lugar a una fibra unida perfectamente, sino que va a ser equivalente a que de las dos partículas, sólo la parte que está en contacto va a contribuir a formar parte de la estructura fibrosa (estructura en “paralelo”, estructuras alineadas en el *eje x*), mientras que el resto de la partícula va a contribuir a la

suspensión como una estructura en “serie”. Este esquema se puede consulta en la figura 2.6 del capítulo 2.

Por lo tanto y como indica la ecuación (2.52), nuestro sistema estará formado por estructuras sólidas en el *eje x* que están en paralelo con estructuras en el *eje z* y con la suspensión. La contribución de cada tipo de estructuras está promediada mediante la fracción de volumen de sólido que se encuentra en contacto por efecto del campo magnético.

En la figura 4.13, se presentan el ajuste a los resultados experimentales discretos y la predicción del modelo de compresibilidades para las variaciones de velocidad, Δc_B^ϕ , del MRaraldite (parte superior) y MRaceite (parte inferior), al comparar las velocidades de propagación cuando sí hay campo magnético aplicado y cuando no lo hay para cada fracción de volumen.

La predicción del modelo teórico implica que la fracción de volumen en contacto formando la estructura se ajusta a la siguiente expresión para el MRaraldite y MRaceite respectivamente:

$$\psi_c = 0.009\phi - 0.057\phi^2 + 0.120\phi^3 \quad (4.1)$$

$$\psi_c = 0.016\phi - 0.120\phi^2 + 0.229\phi^3 \quad (4.2)$$

siendo ϕ la fracción de volumen.

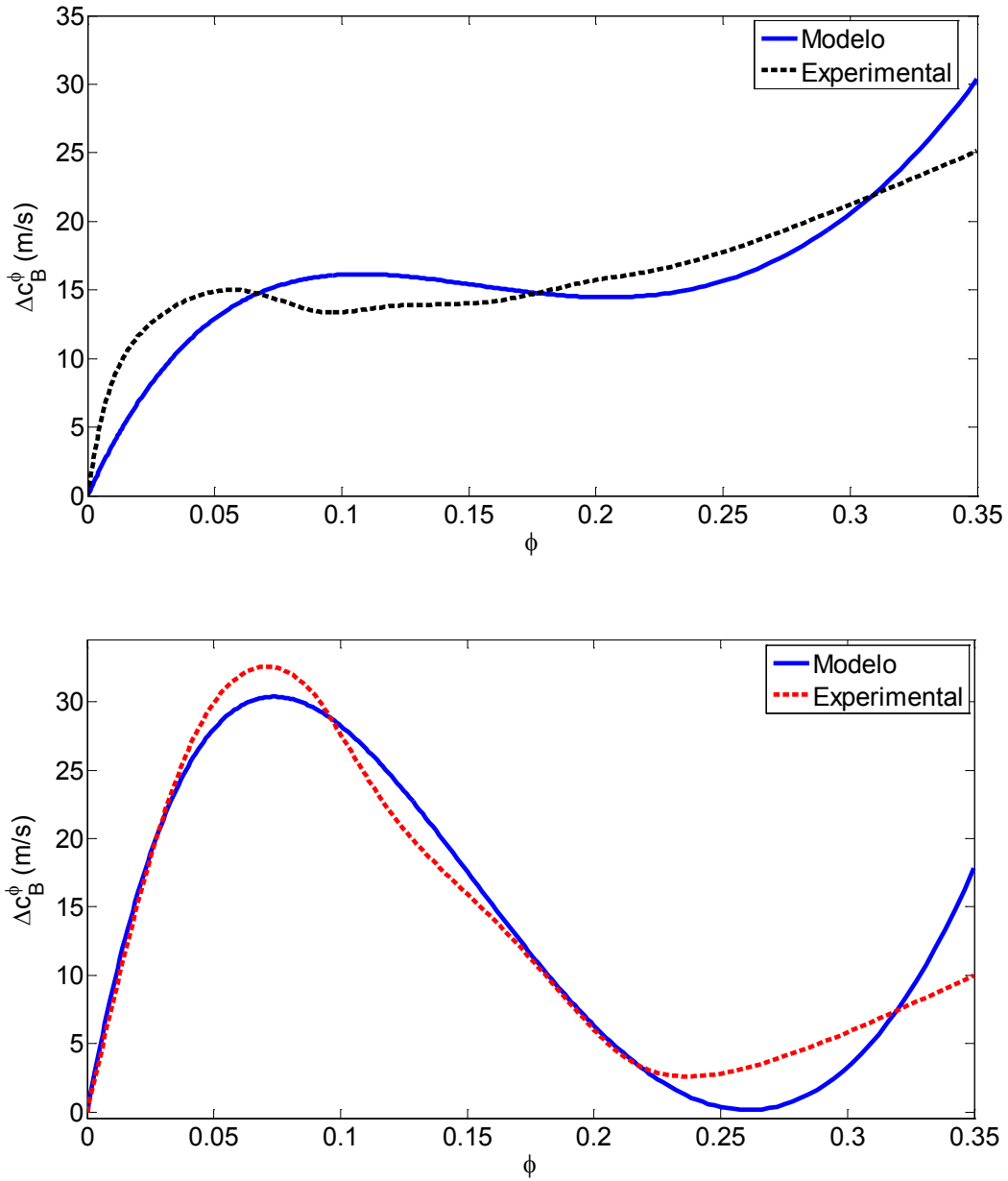


Figura 4.13. En azul se muestra la predicción teórica del modelo de compresibilidades del cambio de velocidad de propagación, para el MRaraldite (arriba) y MRaceite (abajo), al comparar la velocidad de propagación cuando un campo magnético de intensidad de 212mT es aplicado y cuando no lo es. En negro y en rojo, se muestran los resultados experimentales como ajuste de los puntos experimentales discretos obtenidos.

Como se puede observar en la figura 4.13, pese a que el modelo es sumamente sencillo, teniendo en cuenta que es un modelo unidimensional y que nuestra microestructura es altamente compleja y en tres dimensiones, se ve que, sin embargo, predice correctamente los

resultados experimentales si la fracción de volumen en contacto de sólido, ψ_c , se ajusta a los polinomios de las ecuaciones (4.1) y (4.2).

Este modelo representa bien el orden de magnitud del cambio en la velocidad de propagación y aproximadamente también las variaciones de tendencia, subidas y bajadas. De acuerdo a los polinomios de ψ_c , podríamos decir que las estructuras formadas en el MRaraldite y MRaceite son ligeramente diferentes, pese a que responden a un comportamiento similar.

La diferencia de comportamiento se debería atribuir a los componentes de los fluidos, que al ser diferentes darían lugar a una ordenación estructural de las partículas también ligeramente diferente.

4.2. Estabilidad y efecto de la temperatura

4.2.1. Proceso de sedimentación

En este apartado analizamos el proceso de estabilidad o, en su contra, el proceso de sedimentación de los fluidos que se van a considerar a estudio, como son el MRC, el MRaraldite al 25% y el MRaceite al 9%. A modo de calibración para ver la respuesta del sistema con el paso del tiempo, se ha medido también una muestra de Araldite y otra de aceite de oliva con nanopartículas de silicio y grasa de litio, pues son la base de los dos fluidos sintetizados y usados en la Tesis (MRaraldite y MRaceite respectivamente). Este proceso de estabilidad se estudiará viendo las variaciones que se produzcan, tanto en la velocidad de propagación como en la atenuación, ya sea con o sin campo magnético aplicado.

Para estudiar la estabilidad, el experimento realizado consiste en sintetizar los fluidos (cada uno de los cuales conlleva su proceso explicado en el capítulo 3) y, una vez realizado dicho proceso, inmediatamente se vierte el fluido en la célula de medida y se comienza el experimento adquiriendo 999 puntos en 24 horas. El campo magnético se aplica por medio de una pareja de imanes con forma de disco que proporcionan una intensidad de campo de 212 mT de manera uniforme y paralelo al campo acústico. A diferencia del resto de ensayos en esta Tesis, este ensayo no tiene un tiempo previo de estabilización antes de medir, ya que es

justamente este el proceso en el que estamos interesados, por lo que nada más verter el fluido, se comienza la toma de medidas.

En las figuras 4.14 y 4.15, se observan las variaciones de la velocidad y las variaciones de atenuación en función del tiempo para los diferentes fluidos. Los errores no se representan, en primer lugar, porque las gráficas están formadas por un gran número de puntos, por lo que si se añadiesen las barras de error las figuras serían menos claras, pero, además, estos errores, en segundo lugar, no son tan relevantes cuando lo que se trata es de evaluar la tendencia de la evolución de un proceso. Como se explicó en el capítulo 3, los errores en los cambios de velocidad para estas medidas están siempre por debajo del 6%, mientras que en los cambios de amplitud este error está en torno al 10%.

En la estabilidad de las suspensiones estudiadas, se deben destacar dos causas principales. Por una parte, la estabilidad térmica y, por otra, la estabilidad de las partículas suspendidas en el fluido.

La estabilidad térmica depende del tamaño de la muestra (en nuestro caso es siempre el mismo volumen), de la naturaleza del material y de la temperatura a la que se mida. Conociendo el tiempo que tarda el solvente en llegar al equilibrio y, dado que es el medio más abundante, se puede tener una idea aproximada de cuánto tiempo necesita la muestra para alcanzar la misma temperatura a la que se encuentra la cámara de medida, que en nuestro caso son 30°C. Las partículas de hierro, por otro lado, aumentarán la conductividad térmica del medio, favoreciendo el equilibrio térmico y disminuyendo el tiempo necesario para alcanzarlo. Se considera que la temperatura del sistema se ha estabilizado cuando las propiedades acústicas del MRaceite y MRaraldite al 0% son aproximadamente constantes, dentro de unos márgenes de error. Este margen de error será de entre 2 y 3 m/s para la velocidad, pues es el error que se obtiene al calcular la velocidad absoluta, mientras que en la atenuación, este error será del 0.01 dB/mm. Esto es así porque en estos casos de fluidos sencillos las propiedades acústicas no deberían de variar si la temperatura se mantiene constante. De las gráficas 4.14 y 4.15 para el MRaceite 0% y el MRaraldite 0%, se observa que esta estabilidad térmica se alcanza como muy tarde en torno a 1 hora. Una característica de estas medidas es que en

algunos casos donde la medida es muy estable, por ejemplo, como en el caso del MRaraldite 0%, se puede observar un ciclo de cambio de velocidad de ± 0.3 m/s a lo largo de las 24h, que puede ser debido a ciclos térmicos en la regulación de temperatura asociados a cambios en la temperatura ambiente del laboratorio, pese a que se ha procurado tener un cuidadoso control del ambiente. No obstante, estos cambios son pequeños y están incluidos dentro de las cotas de error. Estos ciclos, sin embargo, no aparecen en las medidas de atenuación, por lo que se pone de manifiesto que la velocidad es más sensible a los cambios de temperatura que la atenuación.

Como se explicó en el apartado 2.3 del capítulo 2, las suspensiones de partículas en un fluido son naturalmente inestables debido a la diferencia de densidades entre el solvente y, en nuestro caso, las partículas de hierro, provocando que con el tiempo se pase de una suspensión homogénea de partículas a un medio en el que las dos fases están separadas debido a la sedimentación de la parte sólida. Este efecto se puede entender a partir de la ecuación (2.55). Esta sedimentación se puede ralentizar utilizando solventes de muy alta viscosidad o añadiendo sustancias surfactantes para evitar la interacción atractiva entre partículas. Sin embargo, transcurrido un determinado tiempo, esta sedimentación tendrá lugar salvo que aparezca algún otro factor externo que la evite (por ejemplo, agitación mecánica) y mantenga el sistema estable.

En la sedimentación de suspensiones concentradas se dice que la sedimentación se encuentra retardada o impedida, ya que las interacciones entre las partículas son importantes, alcanzándose velocidades de sedimentación menores que en la sedimentación libre (en la que no se consideran interacciones entre partículas).

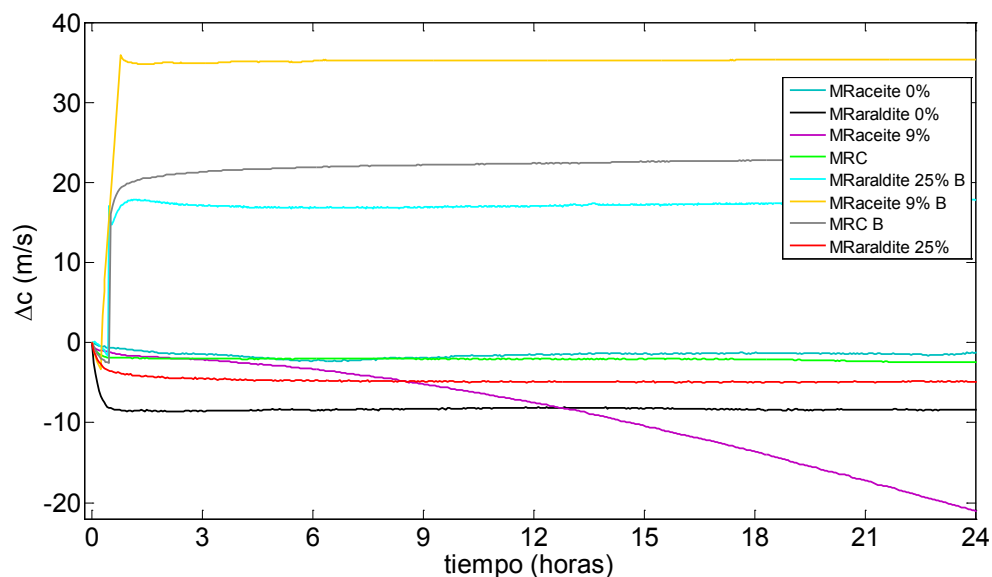


Figura 4.14. Estudio de la estabilidad. Variaciones de velocidad de propagación de los diferentes fluidos de estudio en función del tiempo.

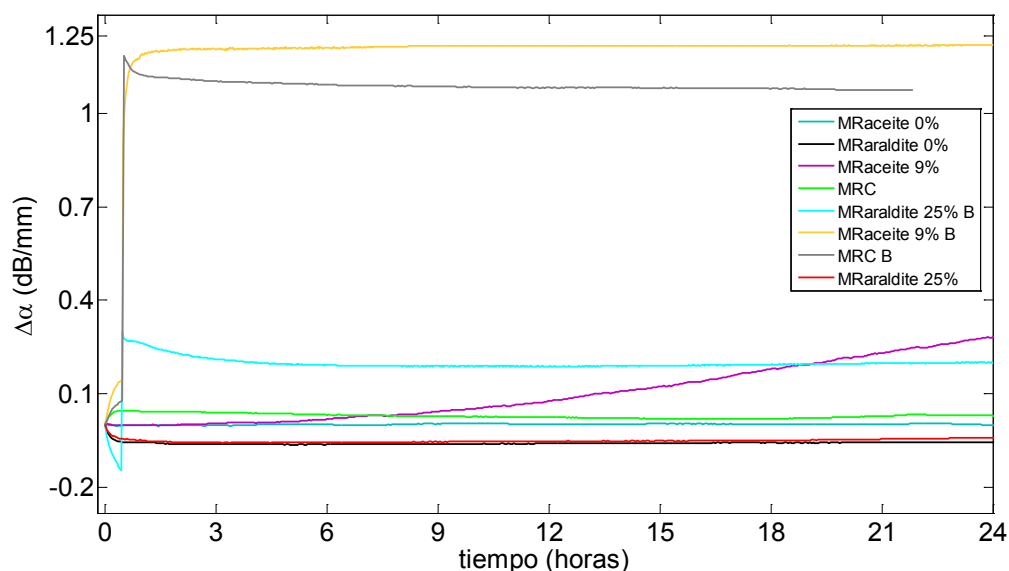


Figura 4.15. Estudio de la estabilidad. Variaciones de la atenuación del sonido de los diferentes fluidos de estudio en función del tiempo.

Observando los resultados en las gráficas 4.14 y 4.15, se puede ver que cuando no hay campo magnético aplicado el fluido MRC, línea de color verde y el MRaraldite al 25%, línea de color rojo, son altamente estables, mientras que el MRaceite al 9%, línea de color morado, no lo es tanto.

El MRC, línea verde, tarda menos de una hora en tener unas propiedades acústicas constantes y, en el transcurso de 23 horas una vez que está estabilizado, su velocidad varía menos de 1 m/s, mientras que en atenuación lo hace en algo menos de 0.02 dB/mm. En el caso del MRaraldite al 25% (línea roja), alcanza el equilibrio en torno a la hora; a partir de aquí y a lo largo de las 23 horas, este sistema cambia hasta 1 m/s, mientras que en atenuación cambia menos de 0.02 dB/mm.

En el caso del MRaceite al 9% (línea morada) se aprecia que se produce tanto una disminución importante de la velocidad de propagación como un aumento de la atenuación con el paso del tiempo. Estos dos comportamientos están de acuerdo con un aumento progresivo de la concentración de volumen como se puede observar de las figuras 4.1 y 4.2. Esto nos indica que es posible monitorizar el proceso de sedimentación mediante esta técnica ultrasónica.

Con miras a la monitorización de este proceso de sedimentación, es preciso considerar que, si en la parte superior de la muestra se produce una disminución de la concentración, aparición de un “sobrenadante” líquido más o menos libre de partículas, en la parte inferior de la misma se va a producir un aumento de la concentración a medida que las partículas vayan sedimentando. Esto se puede apreciar claramente en la figura 4.16. Por lo tanto, según donde esté el transductor ultrasónico se detectará un aumento de la concentración o una disminución.

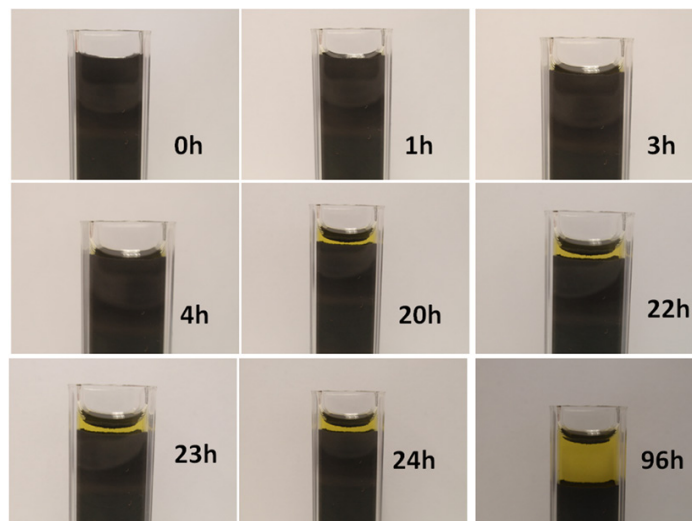


Figura 4.16. Proceso de sedimentación seguido por medio de fotografías para el MRaceite al 9% durante 96 horas. Se puede apreciar cómo en la parte superior, con el paso del tiempo la concentración va disminuyendo, mientras en la parte inferior, la concentración de partículas aumenta.

En nuestro caso, como se ve en la figura 4.17, la cerámica ocupa una gran parte del área de la célula de medida, sin embargo, está desplazada hacia la parte inferior de la misma rompiéndose la simetría de celda. No obstante, los resultados indican que va a contribuir en mayor medida el aumento de la concentración en la parte inferior que el aclarado de las partículas de la parte superior, haciendo que el efecto de la sedimentación venga expresado por un aumento de la concentración respecto a la situación inicial. Esto es debido a que ahora las partículas que se encontraban inicialmente por encima de la cerámica y entran en la zona irradiada por el piezoeléctrico, contribuirán en mayor medida a los parámetros de propagación que las partículas que salen del área por debajo de la cerámica.

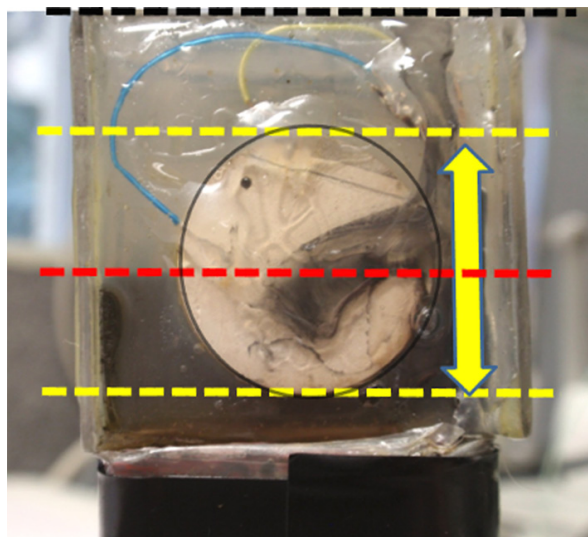


Figura 4.17. Imagen de la célula de medida una vez que las partículas han sedimentado en un fluido MR genérico. La parte blanca central es la cerámica. La línea negra discontinua indica el nivel de fluido MR al inicio del ensayo, la línea roja el nivel de fluido MR pasados varios días. Las líneas amarillas delimitan el área de medida por la cerámica. Como se ve, la cerámica está situada de manera asimétrica, al estar más cerca de la zona inferior. Por esta razón, el proceso de sedimentación implica un aumento de la concentración de partículas con el paso del tiempo.

Si analizamos ahora la estabilidad de los fluidos MR cuando tienen un campo aplicado, MRC B (línea gris), MRaraldite B (línea azul) y MRaceite (línea ocre) se observa una tendencia similar en todos ellos: en los tres casos el campo magnético se aplica antes de la media hora, por lo que no les ha dado tiempo a estabilizarse térmicamente. Sin embargo, una vez aplicado el campo magnético, la estructura formada es altamente estable. De hecho, aunque tarden un poco en ser completamente estables al aplicarse el campo magnético, todos ellos muestran variaciones de velocidad menores a 2 m/s al comparar la velocidad a las 24 horas y a la hora y

media de haber comenzado el ensayo. Con la atenuación pasa algo similar, siendo estas variaciones entre la primera hora y media y la hora 24, menores que 0.04 dB/mm.

Estos resultados muestran que por medio del análisis de las propiedades acústicas se puede evaluar la estabilidad de los fluidos. Otra conclusión interesante es que, sin campo magnético, el fluido comercial MRC es altamente estable y el MRaraldite al 25% también, aunque tarde algo más en llegar a la estabilidad. El fluido MRaceite al 9% es menos estable que los otros dos fluidos, resultando evidente un proceso de sedimentación.

Se aprecia igualmente que el hecho de aplicar un campo magnético aumenta la estabilidad de estos fluidos, pues la estructura queda fijada. Esto es notablemente más importante en el caso del MRaceite al 9% pues, sin campo, este fluido era menos estable.

Por último, de este ensayo se pueden obtener las condiciones óptimas de medida en cuanto a estabilidad térmica y sedimentación se refiere. Esto será importante de cara a establecer los protocolos de medida. El MRC comercial es el más estable de todos a partir de la primera hora. El MRaceite al 9% va sedimentando poco a poco de forma que no podemos considerarlo estable completamente transcurrido ningún periodo de tiempo en particular, aunque, durante las primeras horas, la pendiente de las curvas correspondientes de las figuras 4.14 y 4.15 es menor. El MRaraldite al 25% tarda en torno a una hora para poder ser considerado estable. Por tanto, como criterio para realizar las medidas de todos los experimentos de esta Tesis y medir siempre en las mismas condiciones, se decidió comenzar la toma de datos pasada una hora tras colocar la muestra en la celda de medida y así permitir la estabilidad térmica y estructural. De este modo habrá sido conseguida la estabilidad térmica, y tanto el MRaceite al 9% como el MRaraldite al 25%, en concreto, serán estables al menos durante 3 horas.

Sobre el proceso de sedimentación existe un resultado en la literatura donde se muestra cómo, cuando el campo magnético es nulo, tiene lugar dicho proceso debido a la diferencia de densidades entre las partículas y el fluido (Bramantya *et al.*, 2011b). Sin embargo, bajo la acción de un campo magnético aplicado se observa un proceso de sedimentación bastante notorio

para el caso de un una fracción de volumen de 0.22. A diferencia de este trabajo, en esta Tesis, independientemente de la fracción de volumen usada, siempre se ha comprobado que el efecto de la aplicación de un campo magnético implica una ausencia de sedimentación.

4.2.2. Efecto de la temperatura

En este apartado se analiza la influencia de la temperatura en las propiedades acústicas cuando se genera un campo magnético de 212 mT de intensidad paralelo al campo acústico por medio de imanes y cuando este campo no es aplicado. El proceso de medida, calibración y cálculo ha sido explicado en el apartado 3.2.3 del capítulo 3, “Materiales y Métodos”. A partir de las conclusiones sobre la estabilidad de los fluidos obtenidas anteriormente, se ha decidido estudiar dos fluidos: el fluido MR comercial y el MRaraldite con un 25% de partículas de hierro. La larga duración del ensayo térmico hace inviable el estudio del fluido MRaceite al 9%.

En las figuras 4.18 y 4.19, se representa la evolución de la velocidad de propagación con la temperatura para el MRaraldite al 25% y el MRC, respectivamente. Igualmente que en la sección anterior, no se representan los errores porque hay una gran cantidad de puntos y la gráfica no sería visible adecuadamente. Sin embargo, este error que depende de la velocidad de propagación medida se encuentra siempre por debajo de los 3 m/s.

En estas figuras, se observa siempre una disminución de la velocidad de propagación según aumenta la temperatura. De hecho, en la figura 4.18, se puede observar cómo el fluido MRaraldite al 25%, tanto con campo como sin campo, tiene un comportamiento muy similar a MRaraldite al 0%. Por lo que se puede suponer que a efectos térmicos el solvente, en este caso el Araldite, es la fase que más condiciona este comportamiento. Este descenso de la velocidad de propagación con el aumento de la temperatura es común en los líquidos.

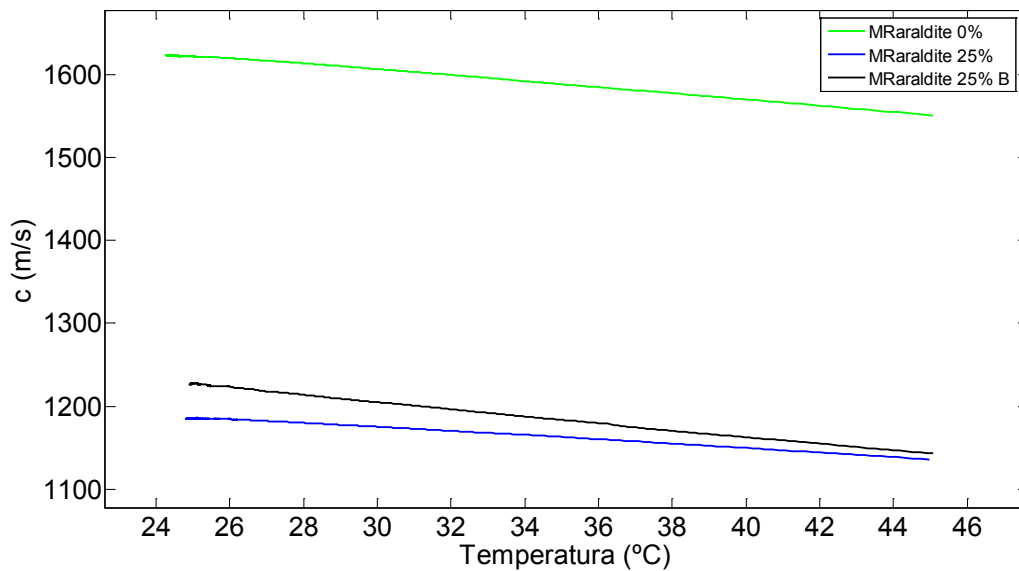


Figura 4.18. Velocidad de propagación del sonido en función de la temperatura para MRaraldite al 0% (línea verde), para MRaraldite al 25% sin campo aplicado (línea azul) y para el MRaraldite al 25% con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea negra).

Cuando se comparan la evolución de la velocidad de propagación con la temperatura, pero incluyendo ahora el efecto del campo, se observa que en ambos fluidos el comportamiento es similar. De la figura 4.19, se deduce que la velocidad del MRaraldite al 25% disminuye al aumentar la temperatura haya o no campo magnético aplicado. Sin embargo, esta variación de velocidad al comparar la velocidad de propagación con campo y sin campo es mayor para las temperaturas más bajas, 25°C, siendo aproximadamente de 40 m/s, mientras que para las temperaturas más altas, 45°C, este cambio de velocidad es de unos 8 m/s.

En la figura 4.19, se aprecia un comportamiento similar para el MRC, pero menos acentuado. Al comparar los cambios de velocidad cuando hay un campo magnético aplicado y cuando no, estos varían entre 20m/s, a 25°C, y 16m/s, a 45°C.

De otra manera, expresando este comportamiento en función de las pendientes, para el MRaraldite al 25%, cuando se aplica el campo magnético, la velocidad cambia 4.1m/s°C, y cuando no se aplica campo magnético cambia 2.45 m/s°C. De otro lado, para el MRC el cambio es de 1.6 m/s°C cuando se aplica un campo magnético y de 1.4 m/s°C cuando no es aplicado.

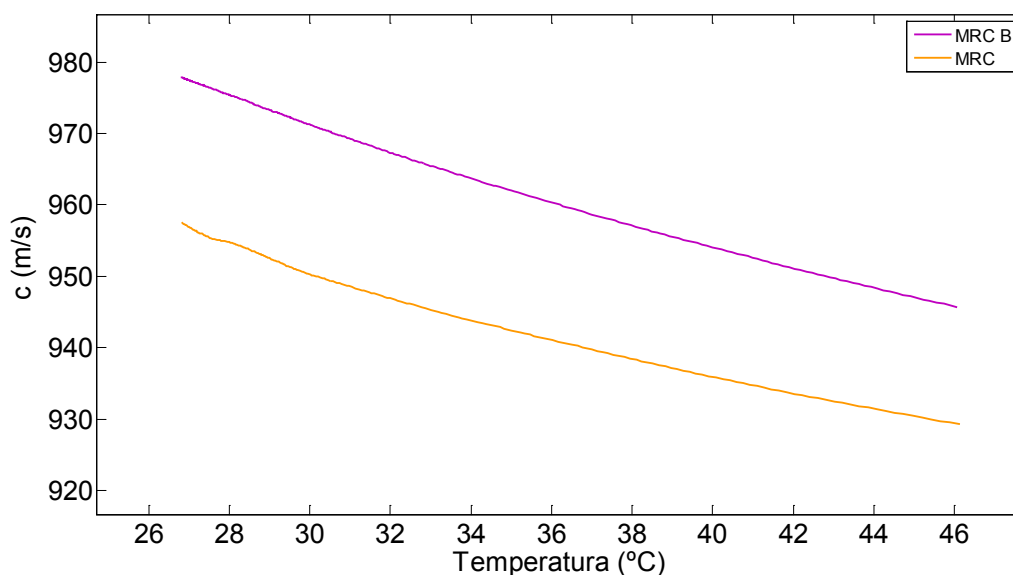


Figura 4.19. Velocidad de propagación del sonido en función de la temperatura para MRC sin campo aplicado (línea naranja) y para el MRC bajo la aplicación de un campo magnético de una intensidad de 212 mT paralelo al campo acústico (línea morada).

A priori y para tener una idea general de qué está pasando, consideraremos nuestras suspensiones con campo y sin campo como si fueran un medio homogéneo efectivo. Este medio estará definido por una densidad efectiva y una compresibilidad efectiva, en la que cada componente participa en dichas magnitudes promediadas mediante su fracción de volumen. La densidad en ambos casos, sea con campo magnético aplicado o sea sin campo magnético aplicado, es la misma, pues es un sistema cerrado y, según Lord, la densidad no cambia al aplicarse un campo magnético; así pues la variación con la temperatura de la densidad será la misma (LordCo). Según esto, la compresibilidad efectiva será la que haga que cambie el comportamiento con la temperatura. Como se ha comentado anteriormente, esta compresibilidad efectiva dependerá de la compresibilidad del solvente y la de la fase sólida. Esta fase sólida, cuando no hay campo magnético aplicado, estará constituida por las esferas de hierro distribuidas aleatoriamente formando la suspensión; mientras que si aplicamos un campo magnético, la fase sólida corresponderá a la estructura compleja formada por las esferas que interactúan entre sí y con el campo magnético. La compresibilidad del solvente es la misma en los dos casos y el comportamiento con la temperatura será similar; por lo tanto, deja como único factor diferencial a la evolución con la temperatura de la compresibilidad de la fase

sólida, ya sea formando esferas independientes cuando no hay campo aplicado, ya sea formando un entramado complejo debido a la interacción magnética cuando se le aplica el campo.

De acuerdo con los resultados experimentales y tras la discusión anteriormente expuesta sobre cuáles son los factores que pueden explicar el diferente comportamiento con la temperatura cuando se aplica o no un campo magnético, se puede deducir que, a temperaturas más bajas, la compresibilidad efectiva decrece más al aplicar el campo magnético y ordenar la estructura. Esto podría explicarse por el hecho de que, al aumentar la temperatura, aumenta la energía térmica, lo cual tiende a desestabilizar ligeramente la estructura formada por la interacción magnética. Esta energía no sería suficiente para vencer a la energía magnética, pero es posible que sea un factor que lo dificulte. Otro posible factor que entorpece la formación de estructuras podría ser la aparición de flujos convectivos dentro de la célula de medida. Sin embargo, existe un trabajo donde se analiza el efecto de la temperatura en unos fluidos MR comerciales y se comprueba que, igualmente, al aumentar la temperatura entre 15 °C y 35°C, la velocidad de propagación disminuye siendo este cambio más notable cuando hay un campo magnético aplicado. Los autores de ese trabajo asocian esta disminución en exclusiva al aumento de energía térmica que desestabiliza las estructuras formadas (Bramantya *et al.*, 2011b).

En la figura 4.20, se presenta la atenuación absoluta de los fluidos MR de estudio, el Araldite y el agua en función de la temperatura. No se representan los errores como se comentó en las anteriores medidas, pero se recuerda que el error es siempre menos al 10%.

Cabe destacar que a diferencia de las velocidades, se aprecia que el comportamiento del MRC y del MRaraldite al 25% no es similar. En el MRC la atenuación aumenta con la temperatura, mientras que en el MRaraldite al 25% disminuye como ocurre con el araldite a 0%, poniendo de relieve que es el solvente el que tiene mayor importancia en las propiedades térmicas.

Comparando la atenuación entre los casos sin campo/con campo, en el MRC se ve que el cambio de atenuación es más notable según aumenta la temperatura, mientras que en el MRaraldite al 25% se mantiene aproximadamente constante siendo ligeramente mayor cuanto menor es la temperatura.

Este diferente comportamiento está influenciado principalmente por la diferencia del solvente utilizado. Por otra parte, la viscosidad en un fluido newtoniano, como es el aceite de silicona u otro aceite mineral, por lo general disminuye al aumentar la temperatura y, según la ley de Stokes para la atenuación en un fluido newtoniano, es directamente proporcional a la viscosidad, por lo que esto podría explicar que la atenuación en el fluido MRaraldite 25% y al 0% disminuya con la temperatura ligeramente, aunque posiblemente existan otros factores que también puedan influir como el comportamiento de la densidad en función de la temperatura o la dependencia de la velocidad con la temperatura.

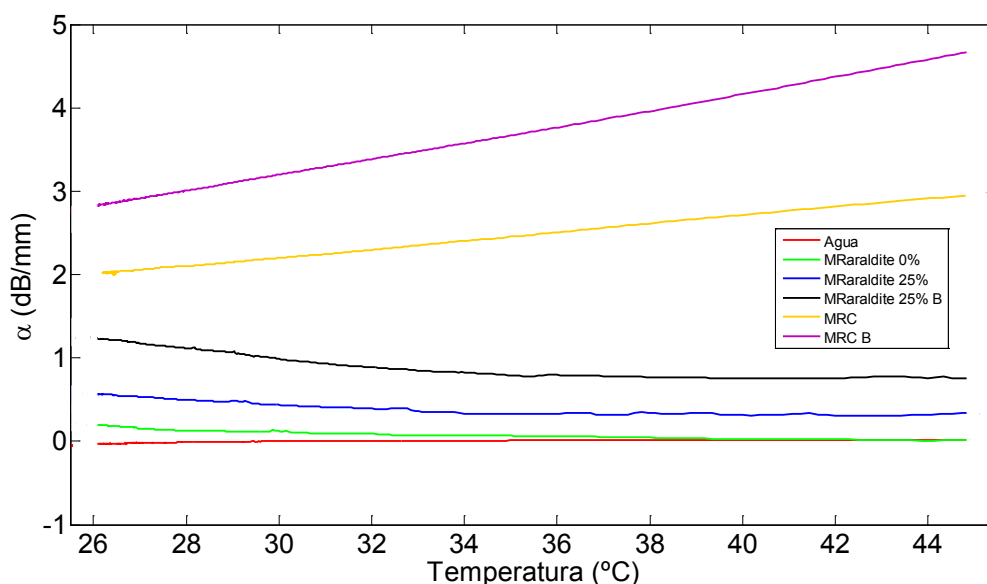


Figura 4.20. Atenuación del sonido en función de la temperatura para agua (línea roja), MRaraldite al 0% (línea verde), MRaraldite al 25% sin campo aplicado (línea azul), MRaraldite al 25% con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea negra), MRC sin campo aplicado (línea naranja), MRC con campo magnético aplicado de 212 mT paralelo al campo acústico (línea morada).

4.3. Efecto de la intensidad y orientación del campo magnético aplicado

4.3.1. Efecto de la intensidad de campo magnético

La intensidad de campo magnético aplicado es un factor de gran importancia en el estudio de estos fluidos. En este apartado se presentan las variaciones de las propiedades acústicas al variar la intensidad de campo aplicado. Para ello se presentan ensayos individuales e independientes a diferentes intensidades para evaluar el efecto de este parámetro. Esta metodología es diferente a la que se llevará a cabo en el apartado 4.3.2 donde se hará un único ensayo elevando la intensidad paulatinamente y posteriormente disminuyéndola para observar posibles efectos de histéresis mecánica.

Para dos muestras de MRaraldite, al 0.01 y al 0.09, se han capturado fotos a diferentes intensidades de campo, a 20 mT, 100 mT y 212 mT. En la figura 4.21, se presentan estas imágenes desde un punto de observación (1), según el eje y .

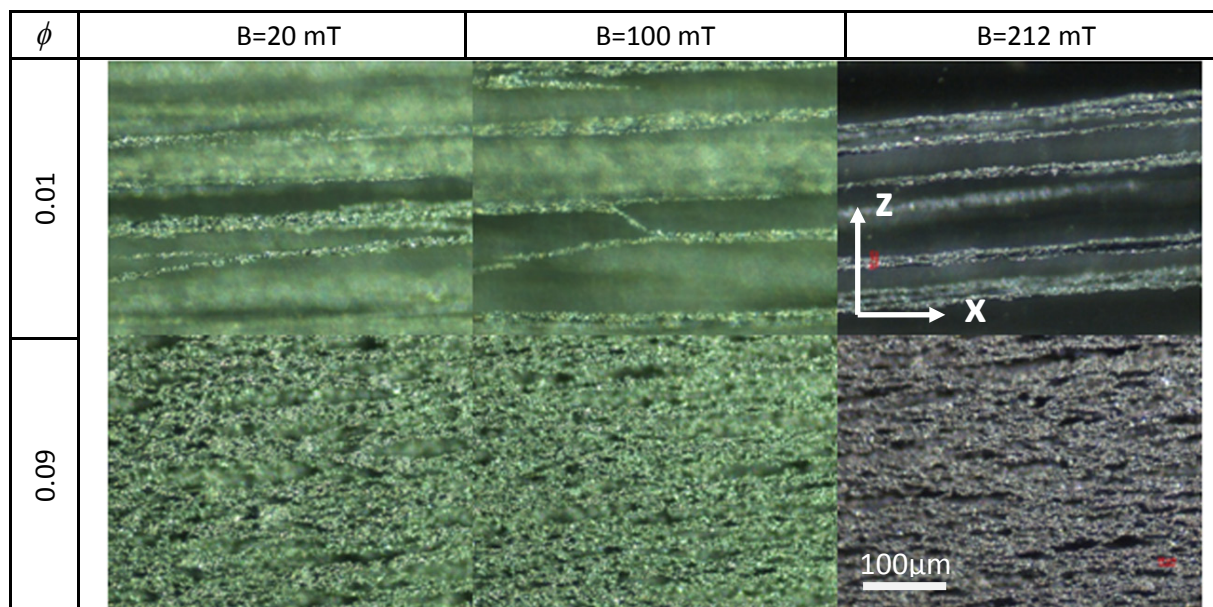


Figura 4.21. Fotografías de MRaraldite al 0.01 sólido (parte superior) y MRaraldite al 0.09 sólido (parte inferior). Las imágenes de izquierda a derecha corresponden a un campo de 20mT, 100mT y 212mT respectivamente. La escala blanca representa $100\mu m$.

A partir de las imágenes microscópicas no se aprecia una gran diferencia al aplicar el campo magnético, especialmente cuando se trata de fracciones de volumen altas. Para bajas fracciones de volumen (0.01) y bajos campos aplicados, las estructuras parecen menos rígidas e, incluso, son un poco más gruesas sin dar sensación de robustez. Con un campo magnético bajo se distinguen zonas donde hay cadenas no horizontales que surgen como unión entre otras estructuras. Las estructuras están más distribuidas en el espacio y por lo tanto, se puede observar que en las zonas menos centrales del volumen del material, hay cadenas que no han sufrido interacción lateral con otras –ver figura 4.22-. Este es el rasgo más diferenciador entre las estructuras formadas a campos bajos, 20 mT, y campos altos, 100 o 212 mT.

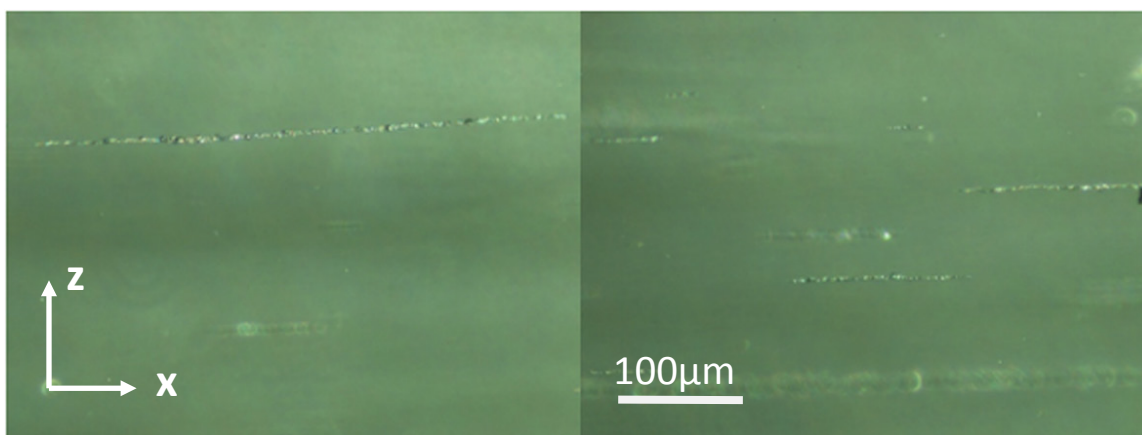


Figura 4.22. Detalle de la fotografía del MRaraldite al 0.01 solidificado bajo la influencia de un campo magnético con una intensidad de 20 mT. Se pueden apreciar fibras de diferentes tamaños suspendidas en el material. Estas fotografías están tomadas en la parte más superficial de la muestra, mientras que las fotografías de la figura 4.21, están tomadas en regiones más centrales del volumen.

Cuando la fracción de volumen es mayor, 0.09, ópticamente no se aprecia una gran diferencia en la microestructura independientemente de la intensidad de campo aplicado. Podría parecer que la estructura es un poco menos compacta a 20 mT en relación con las otras intensidades aplicadas; sin embargo, no es algo que se pueda aseverar con rotundidad. Esto demuestra que es necesario obtener alguna información sobre la rigidez de las estructuras por medio de otro tipo de medidas, como puede ser por ultrasonidos, pues ópticamente no es nada evidente.

En la figura 4.23, se presentan las variaciones de la velocidad de propagación en función de la intensidad de campo magnético aplicada para cada uno de los tres fluidos de estudio, teniendo como referencia la velocidad de propagación de cada fluido cuando no hay campo magnético aplicado. Estos ensayos son experimentos realizados individualmente y de manera independiente para cada intensidad de campo estudiada. Las velocidades absolutas de estos fluidos cuando no se les aplica campo magnético alguno son: Para el MRaraldite 25% 1187 ± 2 m/s, para el MRaceite 9% 1211 ± 2 m/s y para el MRC 954 ± 3 m/s.

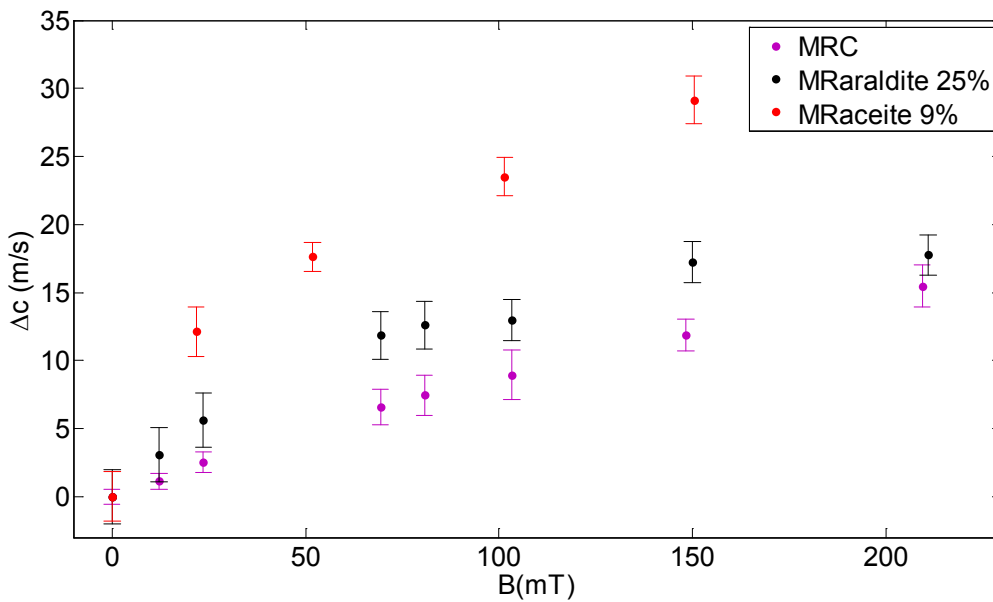


Figura 4.23 Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros), MRaceite al 9% (puntos rojos) y MRC (puntos morados).

En la figura 4.23, se aprecia cómo un aumento del campo magnético aplicado paralelamente al campo acústico provoca un aumento de la velocidad de propagación.

Se puede ver que los cambios mayores en la velocidad de propagación se producen en el MRaceite 9%, mientras que los otros dos fluidos MRaraldite al 25% y el MRC cambian de manera similar, siendo ese cambio menor.

Partiendo de la base de que la densidad no se va a ver afectada por la aplicación del campo magnético, pues la celda de medida es un medio cerrado en el que no se permite variar el volumen, este aumento es explicado por dos efectos. El primero es pasar de una suspensión

a un medio que tiene un cierto orden en la misma dirección que el campo acústico aplicado. El segundo efecto es que, no sólo existe un cambio de orientación o un reordenamiento, sino que, además, al aumentar el campo se provoca una disminución de la compresibilidad y, en consecuencia, un aumento de la rigidez debido a que la interacción magnética entre las partículas es mayor.

Antes de entrar a estudiar la figura 4.24, se recuerda que las atenuaciones absolutas de estos fluidos cuando no se les aplica campo magnético alguno son: para el MRaraldite 25% 0.44 ± 0.4 dB/mm, para el MRaceite 9% 2.2 ± 0.2 dB/mm y para el MRC 2.2 ± 0.2 dB/mm.

Si se observa ahora la variación de la atenuación con el aumento del campo magnético respecto a la atenuación de cada fluido cuando no hay campo magnético aplicado, en la figura 4.24, se aprecia que, al igual que la velocidad de propagación, la atenuación también aumenta.

En este caso se ve que el mayor cambio se produce para el MRC, mientras que el MRaceite al 9% y el MRaraldite al 25% varían de manera similar pero en menor medida.

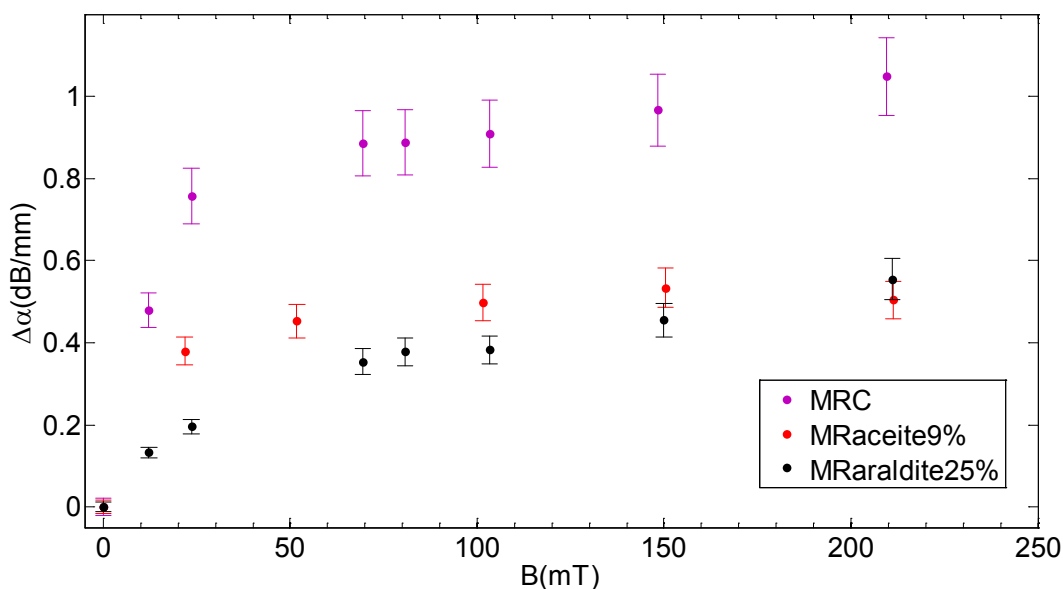


Figura 4.24. Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos a estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros), MRaceite al 9% (puntos rojos) y MRC (puntos morados).

Si se comparan las magnitudes de cambio en ambas propiedades, se aprecia que los cambios en atenuación son mucho mayores que los cambios en velocidad; de hecho, los cambios en velocidad son de un 3%, mientras que los de atenuación son de un 30% o, incluso, de un 100%. Esto implica que la atenuación es más sensible a la aplicación de un campo magnético que el cambio de velocidad. Esto es razonable si se piensa estas estructuras están mejor definidas debido a la rigidez estructural que les otorga el aumento del campo magnético, provocando que la fricción entre fluido y estructura se incremente, y por lo tanto, cause que la atenuación sea mayor.

4.3.2. Histéresis

Una vez que se ha analizado la variación de las propiedades acústicas en función de la intensidad de campo aplicada, se pasa a analizar un fenómeno interesante como es la aparición de histéresis en estos medios. Para ello, se ha realizado una rampa de subida y una rampa de bajada continua de intensidad para ver cómo el material recupera o no su estado inicial. En las figuras 4.25, 4.26 y 4.27 se presentan los resultados de los cambios de velocidad para el MRaraldite al 25%, el MRaceite al 9% y el MRC.

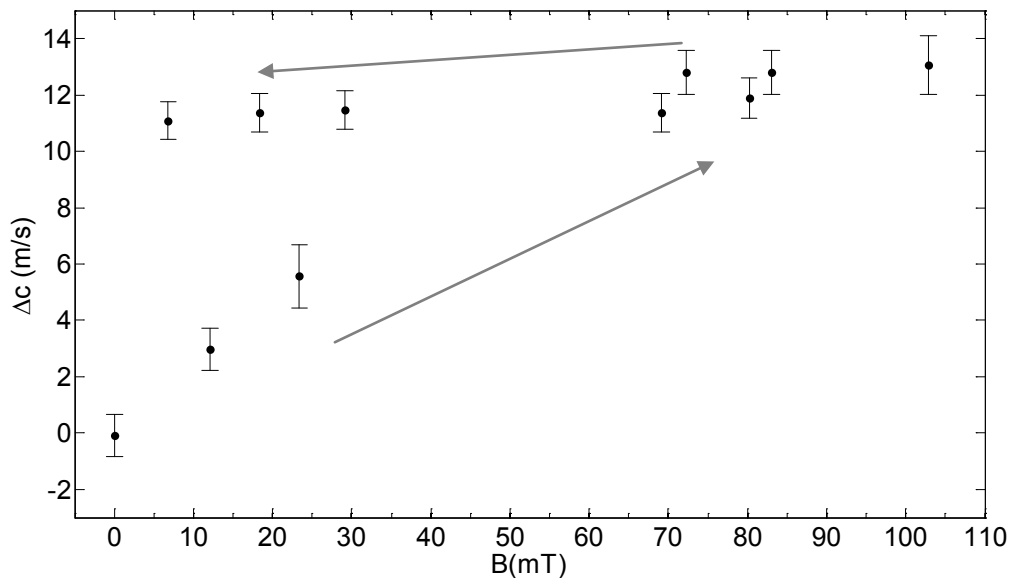


Figura 4.25. Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada, señalada por las flechas.

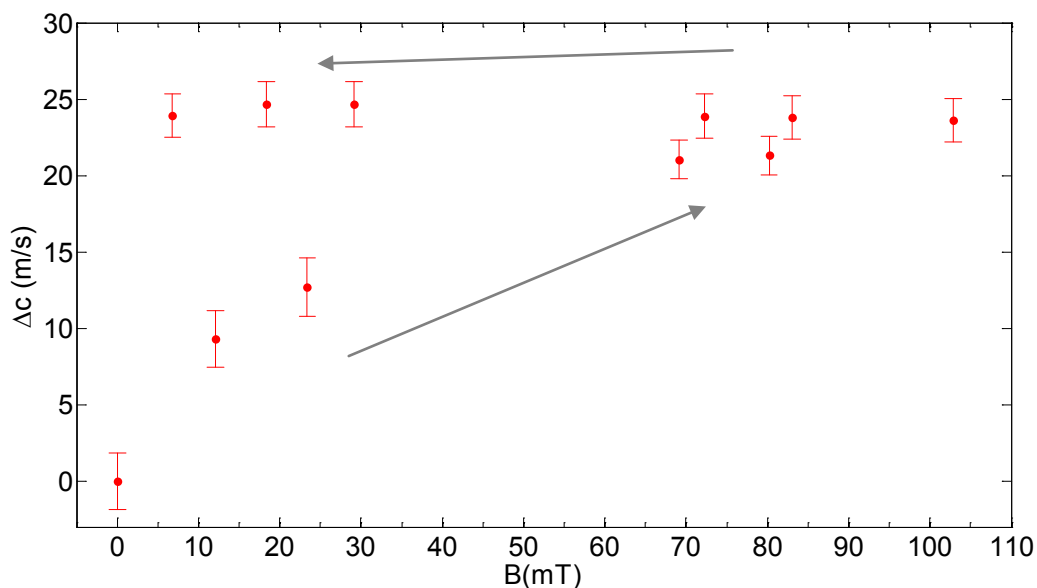


Figura 4.26. Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRaceite al 9% (puntos rojos). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

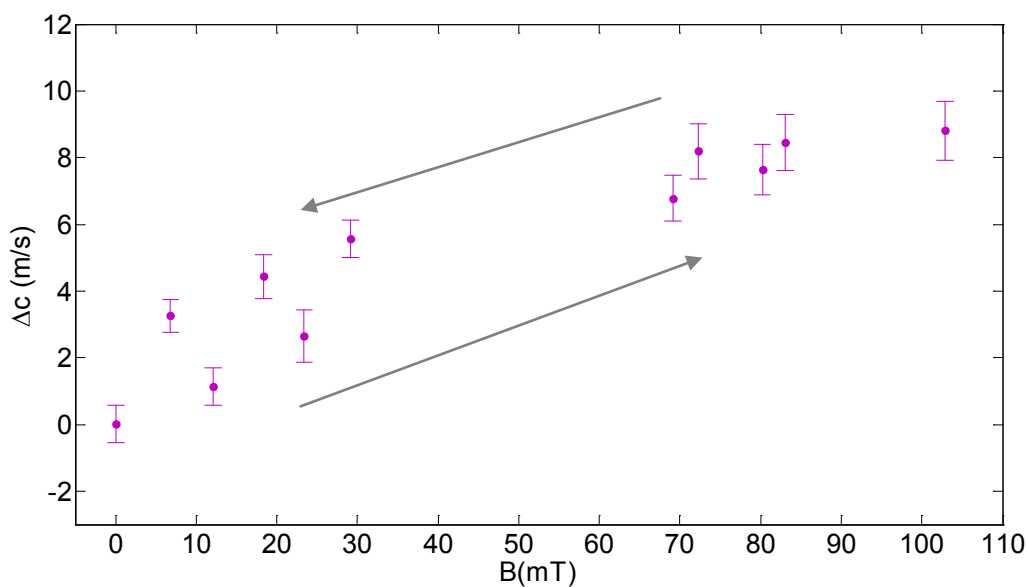


Figura 4.27. Variaciones de velocidad en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRC (puntos morados). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

Al ver los resultados de los cambios en velocidad, se puede apreciar que ninguno de los tres fluidos recupera su estado inicial una vez que se deja de aplicar el campo magnético; esto es, los fluidos presentan histéresis mecánica. Esto, sin duda alguna, está relacionado con la

imaneación remanente propia del ferromagnetismo de las partículas de hierro al dejar de aplicar un campo magnético. Esta imaneación remanente favorece que las estructuras sigan sin deshacerse del todo provocando que las propiedades iniciales no se recuperen. No obstante, se puede apreciar que el fluido MRC recupera en mayor medida que los fluidos no comerciales, MRaraldite al 25% y MRaceite al 9%. Aparte de la presencia de la imaneación remanente, otros factores, como los fenómenos de adhesión debido al contacto entre las partículas y el medio fluido o la presencia de irregularidades en la superficie de las partículas, propician que las estructuras no lleguen a desvanecerse completamente.

El MRC posiblemente presente menos histéresis por la presumible presencia de aditivos para evitar esos efectos histeréticos. En el caso del MRaraldite no hay ningún añadido, mientras que en el MRaceite, el añadido de grasa de litio y nanopartículas de sílice tienen principalmente un efecto espesante para conseguir una reducción de la sedimentación más que un efecto separador de las partículas. Por esta razón, el MRC presenta menos histéresis.

La aparición de histéresis al estudiar el cambio en la velocidad de propagación había sido tratada en la literatura en otros fluidos MR. Sin embargo, este fenómeno observado a través de la atenuación nunca antes había sido publicado.

Si nos fijamos en los resultados de los cambios de atenuación para los fluidos estudiados MRaraldite al 25%, MRaceite al 9% y MRC, figuras 4.28, 4.29 y 4.30 respectivamente, lo más destacable es que ahora los tres fluidos presentan claros fenómenos de histéresis a diferencia del caso del estudio de la velocidad de propagación, donde el MRC lo presentaba en mucha menor medida.

Este comportamiento indica que la atenuación es más sensible al reordenamiento y cambio de orientación de las partículas que la velocidad. Debido a esto, una vez que el campo magnético deja de ser aplicado, la atenuación recupera en menor medida que la velocidad al permanecer las estructuras orientadas por la remanencia de las partículas y no recuperar su posición inicial.

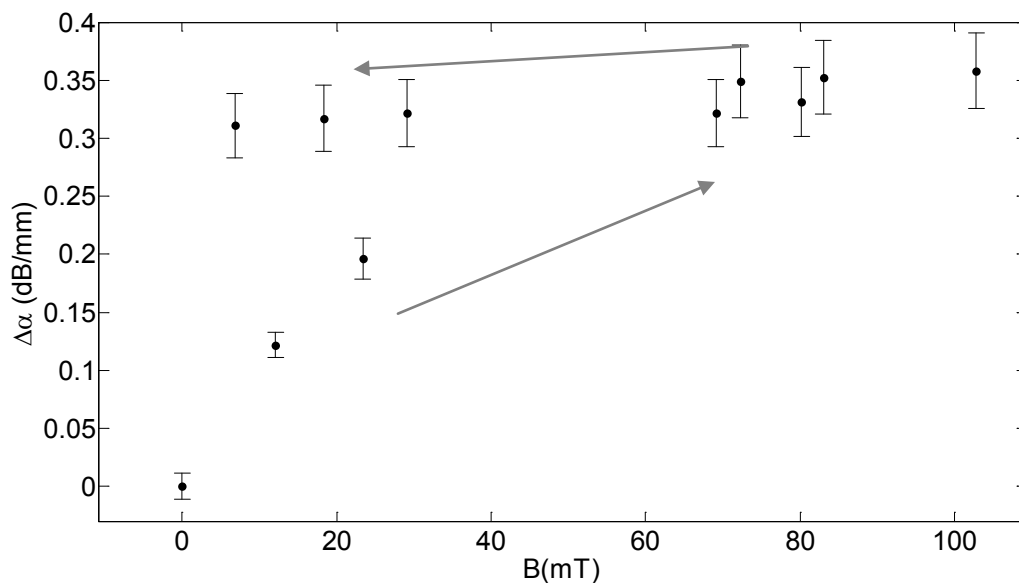


Figura 4.28. Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRaraldite al 25% (puntos negros). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada señalada por las flechas.

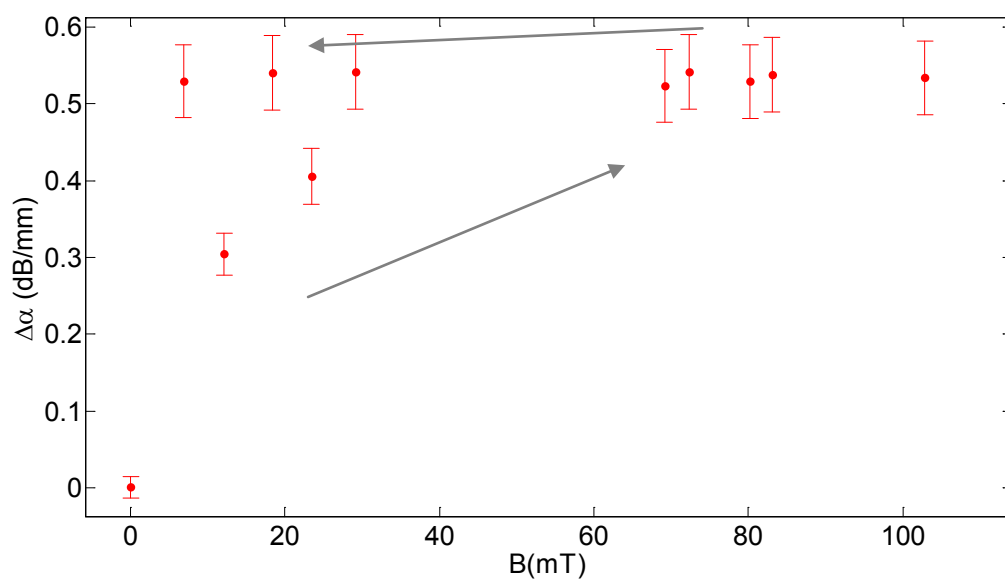


Figura 4.29. Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRaceite al 9% (puntos rojos). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada.

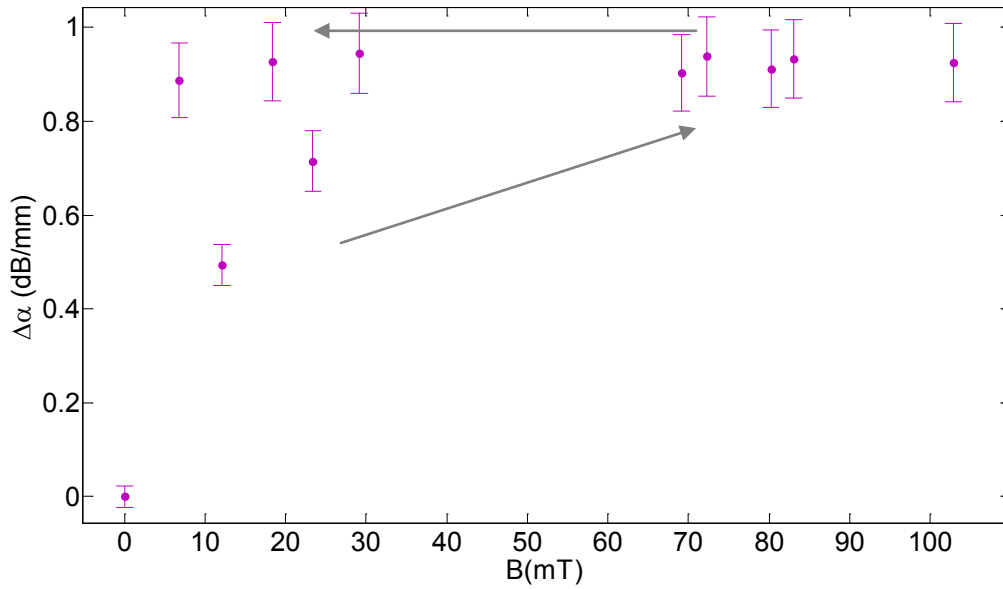


Figura 4.30. Variaciones de atenuación en función de la intensidad de campo magnético uniforme y paralelo al campo acústico para los fluidos de estudio, MRC (puntos morados). El campo es aplicado de manera continua haciendo la rampa de subida y bajada.

4.3.3. Anisotropía

El efecto de la anisotropía en las propiedades acústicas en los fluidos MR es una de las pocas propiedades que se han estudiado con cierto detalle por parte de otros autores, teniendo en cuenta que aún así hay pocas publicaciones sobre esta temática en la literatura (Bramantya *et al.*, 2009; Bramantya *et al.*, 2010).

Nuestro sistema experimental está dimensionado principalmente para estudiar el efecto de la aplicación de un campo magnético aplicado en la dirección paralela a la propagación acústica. Sin embargo, aunque no sea de manera óptima, también se puede estudiar el efecto de aplicar un campo perpendicular a la propagación acústica y preferentemente cuando la fracción de volumen es alta, ya que a bajas concentraciones y campos no homogéneos se produce una migración de las partículas en la zona central de la celda que dificulta la interpretación de las medidas. De hecho, el poder desarrollar experimentos en los que se cambie la orientación del campo magnético respecto al campo acústico es interesante con miras a estudiar el efecto de conmutar entre campos paralelos y perpendiculares en secuencia,

pues podría ser objeto de algún tipo de aplicación, ya que las propiedades en esos casos son muy diferentes.

Siempre se observa que el cambio de velocidad es menor cuando el campo magnético es aplicado en perpendicular que cuando el campo magnético es aplicado en la dirección paralela. Esto coincide con el comportamiento observado en otros estudios (Bramantya *et al.*, 2009; Bramantya *et al.*, 2010). En la atenuación pasa algo similar, la atenuación es siempre mayor cuando el campo magnético es aplicado paralelamente y no perpendicularmente; sin embargo, como se indicó con anterioridad, la atenuación no había sido estudiada previamente.

En la tabla 4.7, se comparan las velocidades y atenuaciones obtenidas cuando se aplica un campo magnético de 60 mT de intensidad, cuando dicho campo está orientado tanto en paralelo como en perpendicular al campo acústico, para el MRaceite al 9%, MRaraldite al 25% y MRC. Hay que indicar que los resultados no son cuantitativamente comparables porque los campos no son exactamente iguales y las distancias tampoco; por tanto, la comparación sólo puede ser cualitativa.

Tabla 4.7 Valores absolutos de la velocidad de propagación y atenuación del sonido para los fluidos estudiados para las orientaciones paralelas y perpendiculares del campo magnético respecto al campo acústico. La intensidad de campo magnético es de 60 mT en ambos casos.

| Magnitud | C (m/s) | | α (dB/mm) | |
|-----------|---------|--------|------------------|----------|
| | | ⊥ | | ⊥ |
| MRarald25 | 1196±2 | 1188±2 | 0.73±0.07 | 0.55±0.5 |
| MRaceite9 | 1231±2 | 1206±2 | 2.7±0.3 | 2.2±0.2 |
| MRC | 959±3 | 944±3 | 3.0±0.3 | 2.0±0.2 |

Para analizar el efecto en las propiedades mecánicas de los fluidos MR cuando se varía sucesivamente la orientación de los campos magnéticos aplicados o se suprimen, se ha utilizado el MRC, pues da lugar a cambios significativos. En estos experimentos y por razones prácticas, se ha recurrido a los imanes permanentes como fuentes de campo magnético. Por ello, previamente se ha hecho una comparativa sobre los cambios en las propiedades mecánicas obtenidos con las diferentes fuentes, cuando éstas generan campos magnéticos similares.

En la figura 4.31, se presentan los resultados para los cambios de velocidad obtenidos con las dos fuentes de campo magnético, imanes permanentes y electroimán, cuando se aplica una intensidad de campo de 212mT paralelos al campo acústico y una intensidad de 63mT cuando el campo magnético es perpendicular al campo acústico, comparado con la situación en la que no hay campo magnético aplicado.

Se observa que los cambios obtenidos en la velocidad de propagación en el MRC con los imanes permanentes son ligeramente mayores que los cambios obtenidos con el electroimán, estando, sin embargo, dentro de las cotas de error, por lo que se podría concluir que, pese a que la aplicación con los imanes es mucho menos repetible debido a la forma menos automática de colocar los imanes, el efecto es similar a hacer pasar una corriente controlada con un voltímetro a través del electroimán. Además, los imanes tienen la ventaja de que son mucho más ligeros que un electroimán con la consiguiente mejora de la movilidad de cara a una posible aplicación práctica.

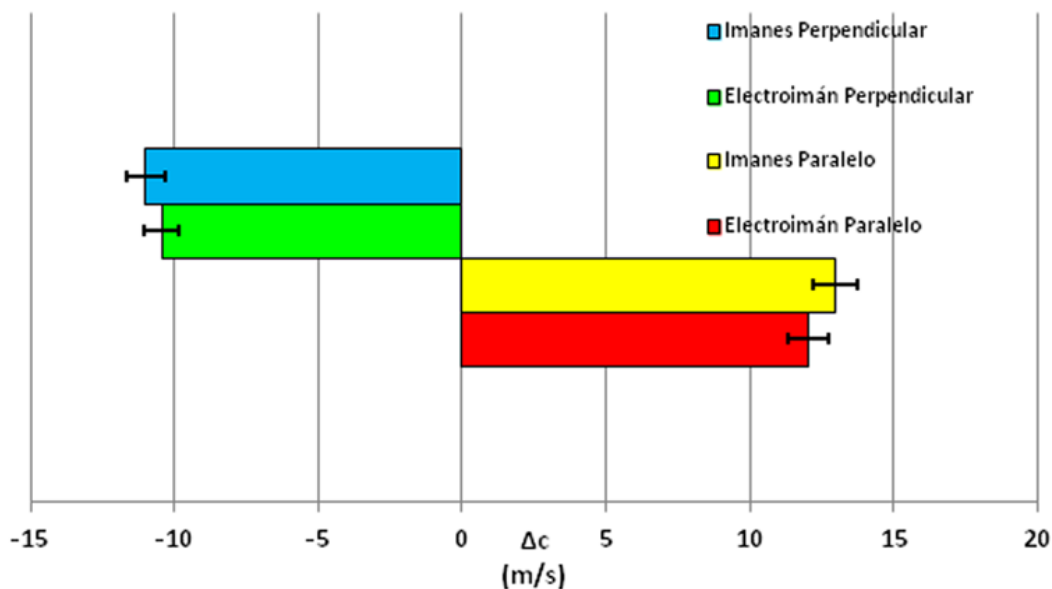


Figura 4.31. Cambios de velocidad producidos en el MRC al aplicar un campo magnético paralelo de 212 mT por medio de un electroimán (rojo) y de imanes permanentes (amarillo), y un campo magnético perpendicular de 63 mT con un electroimán (verde) e imanes permanentes (azul), respecto a la situación en la que no hay campo magnético aplicado.

Si nos fijamos ahora en los resultados de la atenuación, figura 4.32, se comprueba que los cambios en atenuación al aplicar los campos magnéticos son ligeramente mayores para el caso

del electroimán, aunque sigue estando dentro de las cotas de error y, por ello, se pueden considerar ambas fuentes equivalentes.

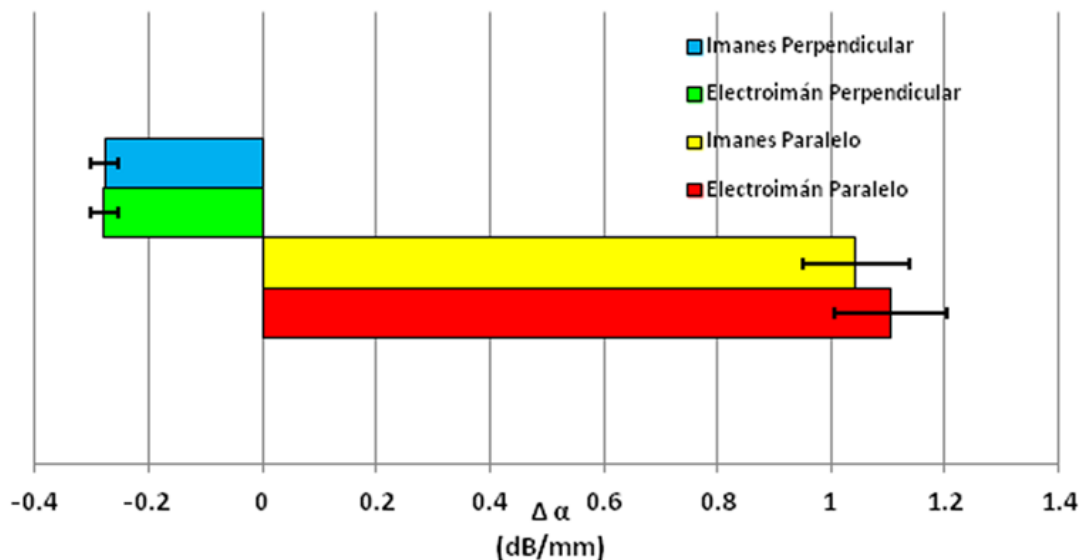


Figura 4.32. Cambios de atenuación producidos en el MRC al aplicar un campo magnético paralelo de 212 mT por medio de un electroimán (rojo) y de imanes permanentes (amarillo), y un campo magnético perpendicular de 63 mT con un electroimán (verde) e imanes permanentes (azul).

Ensayos continuos con MRC e imanes

En las siguientes figuras, 4.33 y 4.34, se presentan los cambios de la velocidad de propagación y los cambios de la atenuación al aplicar una secuencia de campos magnéticos por medio de imanes. Este ensayo se ha realizado para estudiar la respuesta del sistema ante una secuencia de campos que se podría producir en alguna posible aplicación pues se usan de manera continua campos con diferentes uniformidades y orientaciones.

En las figuras donde se representan los cambios en la velocidad de propagación y los cambios de atenuación, de nuevo, los errores no son mostrados para mayor claridad de la figura. Este error para el caso de los cambios en la velocidad de propagación es siempre menor al 6% y en la amplitud es menor al 10%.

En las siguientes figuras, la secuencia de campos aplicados ha sido la siguiente (para ver los detalles de los campos aplicados, se remite al apartado “Campos magnéticos” del capítulo 3):

En la región I, no hay ningún campo aplicado. En la región II, se coloca un imán en forma de disco en uno de los laterales de la celda, justo detrás de la cerámica emisora, de modo que se está aplicando un campo no uniforme y paralelo a la propagación de los ultrasonidos. En la región III, sin retirar el disco de su posición, se coloca otro imán de las mismas características enfrentado al mismo y, por tanto, detrás de la cerámica receptora. Esto va a producir que se pase de un campo no uniforme a un campo prácticamente uniforme. En la región IV, se retiran los dos imanes y, por consiguiente, se deja de aplicar el campo magnético. En la región V, se aplica un imán rectangular en uno de los lados que no tiene cerámica, consiguiendo que el campo aplicado sea no uniforme y perpendicular al campo acústico. En la región VI, dejando el imán anterior en su posición, se coloca otro imán de características similares enfrentado al imán que se ha colocado en la región V; de esta forma, el campo magnético pasa a ser más uniforme e igualmente perpendicular al campo acústico. En la región VII, por último, se retiran los dos imanes haciendo que no haya campo magnético aplicado.

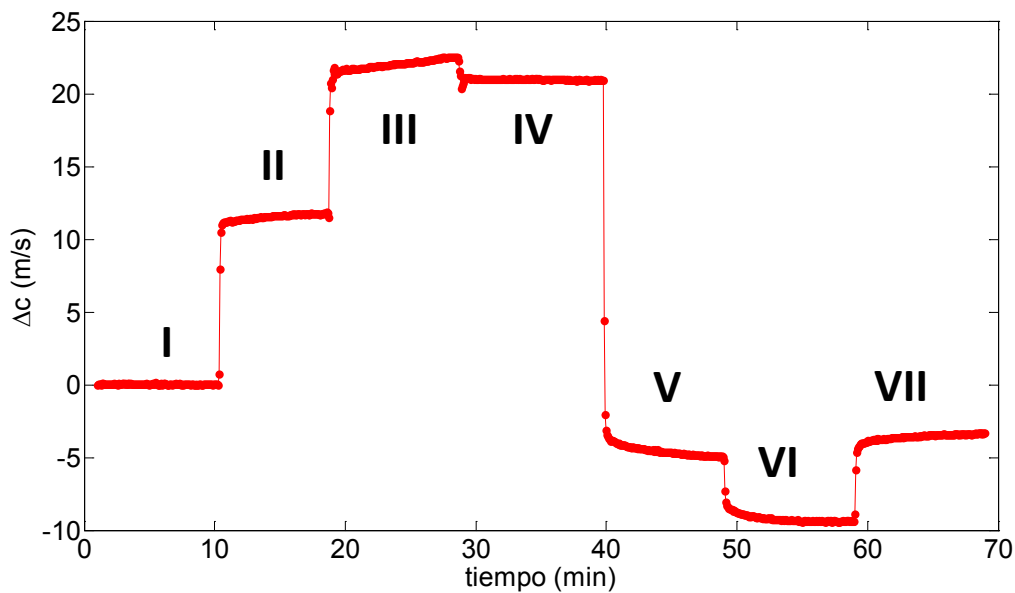


Figura 4.33. Cambio de velocidad producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en paralelo.

A partir de la figura 4.33, se observa que, al aplicar en primer lugar un campo no uniforme y posteriormente colocar un imán paralelo de modo que el campo se uniformice, el cambio conseguido es mayor (23 m/s) que si se pone directamente el campo uniforme paralelo (15 m/s) como se puede apreciar en la figura 4.23.

También es interesante resaltar que, al pasar de no tener campo magnético tras haber pasado el sistema por una configuración paralela (región IV), a aplicar un campo en configuración perpendicular (región VI), en nuestro sistema se produce una variación de velocidad de unos 30 m/s. Esto está relacionado con la aparición de la histéresis del fluido, pues, como se puede observar en la región IV (sin campo magnético), el cambio en velocidad permanece en 20 m/s sin recuperar esa velocidad.

En ambos casos, cuando el campo magnético se dispone de manera paralela o perpendicular al campo acústico, se aprecia que cuando se deja de aplicar el campo magnético, aparece un marcado efecto de histéresis. Es este efecto el que provoca que se obtengan cambios más grandes, al pasar de una configuración a otra, que al pasar de una situación en la que se aplica un campo partiendo de la suspensión sin campo aplicado.

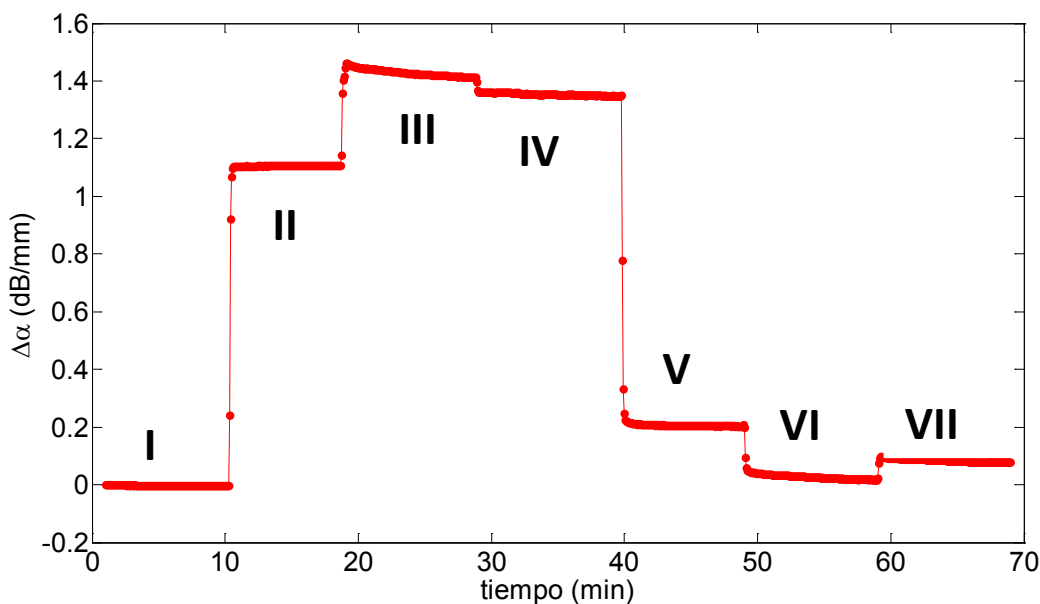


Figura 4.34. Cambio de atenuación producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos aplicados de manera continua por medio de imanes permanentes empezando por una configuración en paralelo.

Con la atenuación se puede apreciar un efecto similar, y es muy significativo que con un campo no uniforme, al colocar tan solo un imán, se consiga un cambio similar al que se produce cuando se le aplica un campo uniforme de 212 mT, 1dB/mm. Se observa también cómo en la región III, el cambio de atenuación es de 1.4 dB/mm, viéndose aumentado el cambio en atenuación al compararlo con la aplicación directa del campo uniforme. Esto es debido a que previamente se ha colocado un campo no uniforme.

El efecto de histéresis es igualmente muy marcado, como se puede observa en las regiones IV y VII, donde la magnitud no recupera su estado inicial.

Debido a la aplicación de esta secuencia de orientaciones de campos magnéticos y a que se aplican inicialmente campos no uniformes, se obtienen cambios mayores que si se aplica directamente un campo uniforme y/o si se incrementa el campo poco a poco.

En las siguientes figuras, figura 4.35 y 4.36, se representan los cambios en la velocidad de propagación y atenuación de un ensayo similar al anterior, pero en este caso se empieza aplicando campos perpendiculares para acabar aplicando campos paralelos al campo acústico.

En las siguientes figuras, la secuencia de campos aplicados ha sido la siguiente (para ver los detalles de los campos aplicados, se remite al lector al apartado “Campos magnéticos” del capítulo 3):

En la región I, no hay ningún campo aplicado. En la región II, se dispone un imán rectangular en uno de los lados que no tiene cerámica, de modo que el campo aplicado sea no uniforme y perpendicular al campo acústico. En la región III, dejando el imán anterior en su posición, se sitúa otro imán de características similares enfrente al imán que se ha colocado en la región II, consiguiendo un campo más uniforme, aunque sigue siendo perpendicular al campo acústico. En la región IV, se retiran los dos imanes y, por lo tanto, no hay campo magnético aplicado. En la región V, se sitúa un imán en forma de disco en uno de los laterales de la cajita, justo detrás de la cerámica emisora; así se consigue un campo no uniforme y paralelo a la propagación de los ultrasonidos. En la región VI, sin retirar el disco de su posición, se añade otro imán de las mismas características enfrente al mismo, y, por tanto, detrás de

la cerámica receptora. Esto implica que se pase de un campo no uniforme a un campo mucho más uniforme. En la región VII, por último, se retiran los dos imanes ocasionando que no haya campo magnético aplicado.

A pesar de que los resultados son similares a los del anterior ensayo, parece que con esta secuencia de campos, el cambio máximo en la velocidad de propagación es menor; resultando en todo caso superior al cambio que se produce cuando el campo es aplicado por el electroimán.

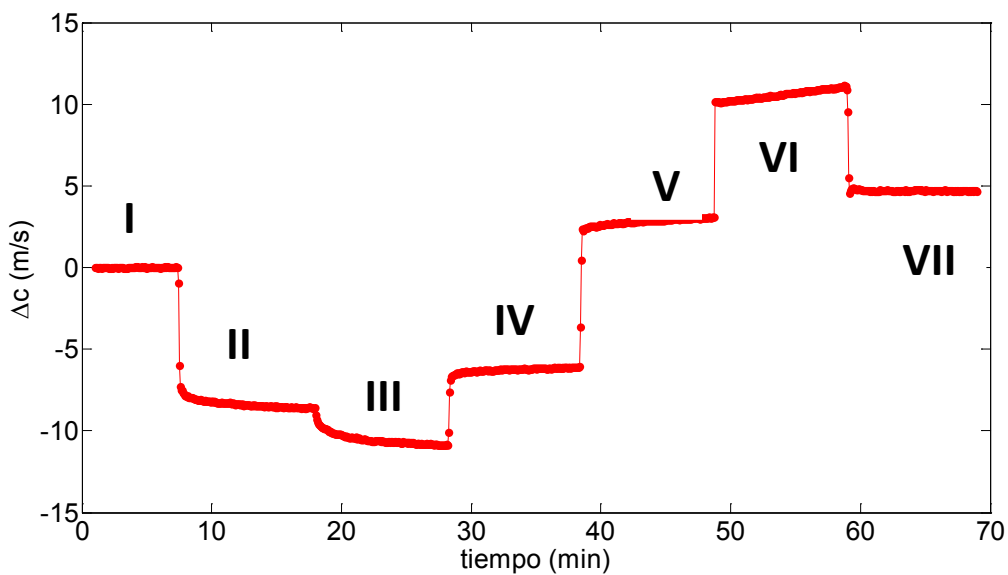


Figura 4.35. Cambio de velocidad producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos magnéticos de manera continua por medio de imanes permanentes, empezando por una configuración en perpendicular.

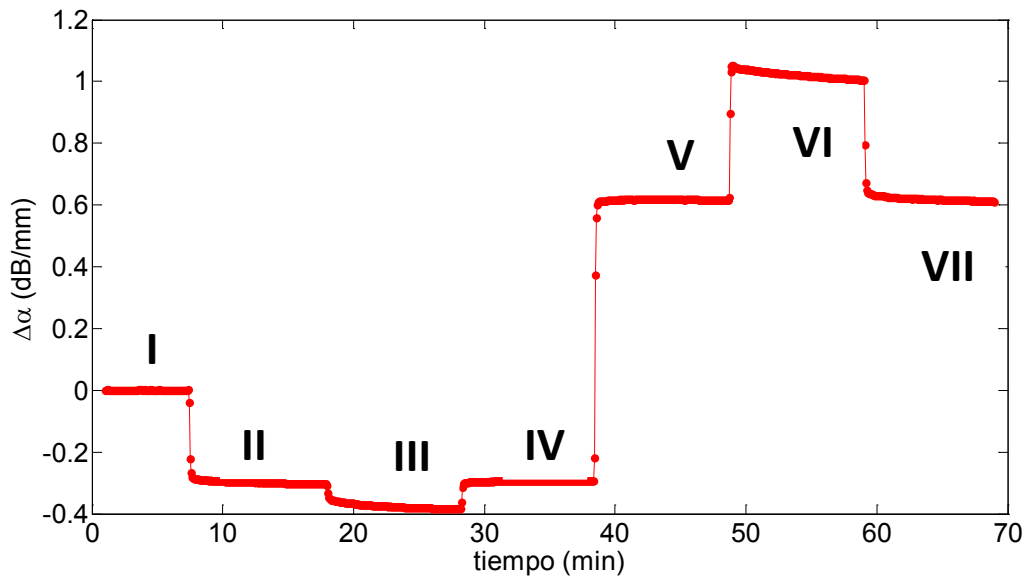


Figura 4.36. Cambio de atenuación producido en el MRC al aplicar la secuencia de campos magnéticos de manera continua por medio de imanes permanentes, empezando por una configuración en perpendicular.

4.4 Caracterización reológica por medio de ultrasonidos

El principal objetivo en este apartado es analizar la posibilidad de emplear técnicas ultrasónicas de medida como un procedimiento complementario a las técnicas reológicas para determinar el esfuerzo umbral y, por ello, obtener información del proceso de ruptura de la microestructura de un fluido MR en presencia de esfuerzos de cizalla.

Es especialmente importante caracterizar convenientemente este proceso de ruptura, pues está asociado a una situación en la que las propiedades mecánicas de los fluidos MR cambian de manera drástica. Como se explicó en el capítulo 2, se puede hablar de dos esfuerzos umbrales: el estático y el dinámico. El estático básicamente corresponde al esfuerzo necesario para iniciar el movimiento, mientras que el dinámico es el esfuerzo necesario para conseguir una ruptura continuada de las estructuras una vez superado el esfuerzo estático, de modo que el sistema fluya en régimen estacionario.

En el capítulo 2, se ponen de manifiesto varias consideraciones importantes para calcular estos esfuerzos umbrales. Por un lado, en lo relativo a la determinación del esfuerzo umbral estático, hay que tomar un criterio arbitrario para poder afirmar cuándo la velocidad de

deformación deja de ser "cero" (esto es así porque el reómetro nunca mide valores nulos). Por otro lado, para la determinación del esfuerzo umbral dinámico es necesario especificar siempre el intervalo de velocidades de deformación en el que se realizará el ajuste lineal entre el esfuerzo y la velocidad de deformación.

Además, como se explicó también en ese capítulo, hay que tener en cuenta que los puntos de la curva de flujo deben ser estados de equilibrio. Para ello, entre la adquisición de dos puntos consecutivos del reograma hay que dejar un tiempo suficientemente largo, que proporcione una velocidad de deformación que garantice esa condición. En general, la mínima velocidad de deformación ha de corresponder a la inversa del tiempo empleado en la adquisición de los puntos. Atendiendo a este criterio, la mínima velocidad de deformación que podemos medir de manera fiable es de $0.1s^{-1}$. También hay que tener en consideración que en los ensayos reológicos con fluidos MR bajo la acción de un campo magnético, los cambios no son demasiado bruscos, pues, aunque se inicie la ruptura, la estructura se puede volver a recomponer por el efecto del campo magnético, lo cual da lugar a cambios menos abruptos que los esperados según el modelo teórico.

Debido a la dificultad inherente en la determinación del esfuerzo umbral, se pretende explorar la viabilidad de la utilización de técnicas ultrasónicas para dicho fin.

En este trabajo se han usado tres técnicas experimentales diferentes, ópticas, reológicas y acústicas, para caracterizar la ruptura del fluido MRNice. Como se verá a lo largo de esta sección, por medio de los ensayos reológicos se puede determinar cuáles son los esfuerzos umbrales; sin embargo, usando la información que dan otras técnicas, en este caso las acústicas y las ópticas, se puede obtener otra información complementaria relevante. Así pues, los resultados de estas técnicas se han relacionado entre sí para lograr un mejor y más completo conocimiento del proceso que tiene lugar. Se han realizado dos experimentos diferentes para tratar de conocer este proceso de ruptura. En el texto se hará referencia siempre a ellos como *ensayo 1* y *ensayo 2*. Las condiciones para cada uno de ellos se detallan a continuación:

Ensayo 1, baja fracción de volumen. Se ha realizado una rampa de esfuerzo de cizalla hasta 120 Pa bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT. El espacio entre placas es de 0.3 mm. La fracción de volumen de partículas del fluido MR utilizado es de 5 %. Es importante destacar que este es el único ensayo en el que se han podido realizar simultáneamente los tres tipos de medidas (acústicas, ópticas y reológicas).

Ensayo 2, alta fracción de volumen. Se han llevado a cabo dos experimentos independientes, uno bajo la acción de un campo magnético y otro sin la acción del campo magnético. Estos dos ensayos corresponden a rampas de esfuerzo de cizalla. En ambos experimentos la distancia entre placas del reómetro es de 1 mm y la fracción de volumen del fluido MR de estudio es de un 30 %. En el primer ensayo, correspondiente a la primera de estas rampas, se ha aplicado un esfuerzo hasta 500 Pa y no se ha usado ningún campo magnético para ver la respuesta del fluido como referencia. Durante la segunda rampa de esfuerzo, hasta 1000 Pa, por el contrario, se ha aplicado un campo magnético de 40 mT. Debido a la alta fracción de volumen utilizada en el fluido, tan sólo se han podido realizar medidas reológicas y acústicas. La mayor distancia entre las placas del reómetro en relación con el *ensayo 1* mejora la precisión de las medidas acústicas, pero imposibilita las medidas ópticas.

Cuando se aplica el campo magnético de 40 mT con la bobina, las líneas de campo son perpendiculares a las placas del reómetro, pero paralelas al campo acústico. Esto se debe a que la placa superior del reómetro tiene su superficie enfrentada al traductor para que actúe de reflector de la radiación ultrasónica. En la figura 4.37, se puede ver un esquema.

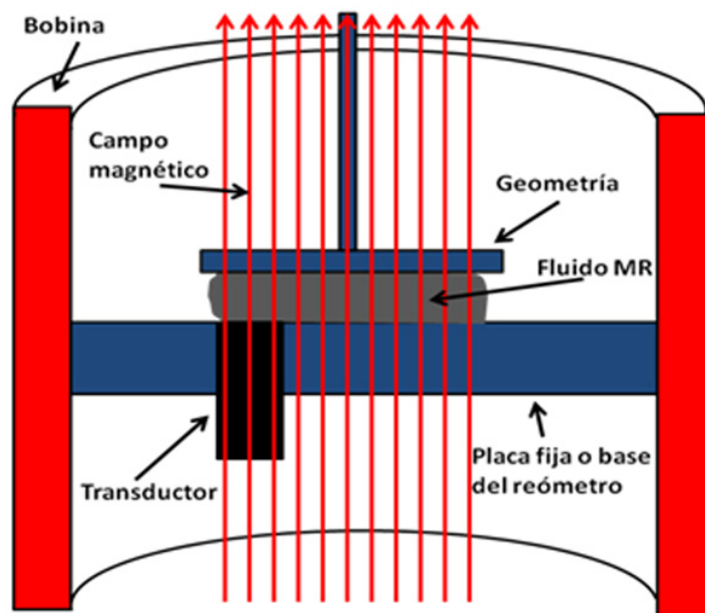


Figura 4.37. Esquema del reómetro. Las partes azules son las placas del reómetro. La parte inferior es fija y la superior, denominada geometría, es la que ejerce la cizalla rotando.

Previamente a mostrar los resultados obtenidos para cada ensayo realizado, se describe el proceso completo de adquisición de datos a través de las variaciones de tiempo de vuelo en función de los puntos de adquisición (que están directamente relacionados con el intervalo temporal durante el cual se realizan los ensayos), pues, aunque luego sólo nos fijaremos en una de las regiones aquí explicadas -la región IV-, los ensayos pasan por varias fases. La figura 4.38 muestra dos ejemplos; sin embargo, el proceso es el mismo para todos los experimentos realizados.

La región I de esta figura 4.38 corresponde a una primera zona en la que se mantiene el fluido en reposo en ausencia de campo magnético; no hay ningún esfuerzo aplicado. Se observa cómo no hay variaciones de tiempo de vuelo indicando que la suspensión es estable.

En la región II, el fluido es sometido a una precizalla con velocidad de deformación constante de 50 s^{-1} . En esta etapa se consigue "borrar" la memoria del fluido MR. Este proceso permite una dispersión y homogenización de las partículas, pues el fluido no está sujeto a la acción de ningún campo magnético todavía. Cuando la placa superior está girando, se observa que aparecen oscilaciones en el tiempo de vuelo. Al estar girando, en este caso a una velocidad de deformación constante, se puede relacionar la aparición de estas oscilaciones con una falta

de paralelismo entre placas del reómetro. Esta falta de paralelismo es pequeña (generalmente del orden de algunas centenas de micras), pero es suficiente para que pueda ser observada a través del tiempo de vuelo.

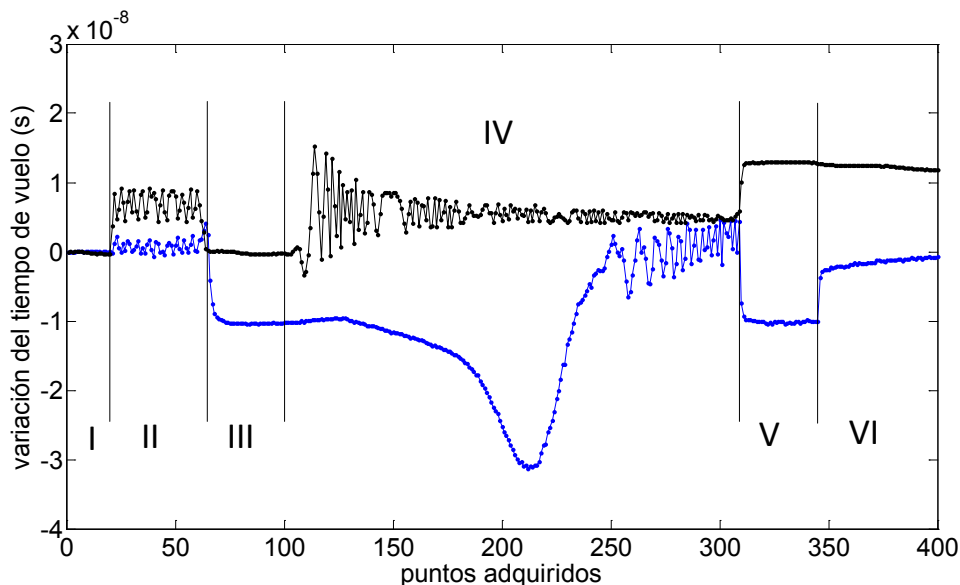


Figura 4.38. Proceso de adquisición completo de los ensayos. Se representan las variaciones de tiempo de vuelo frente a los puntos de adquisición (el tiempo de adquisición entre puntos es de 3 segundos). En el ensayo correspondiente a los puntos negros nunca se aplica un campo magnético. En el caso del ensayo correspondiente a los puntos azules el campo magnético está aplicado desde la región III a la V, ambas incluidas.

En la región III, se hace cero la velocidad de deformación. En el ensayo correspondiente a los puntos azules se aplica un campo magnético de 40 mT. En el correspondiente a los puntos negros no se aplica ningún campo magnético. En ambos casos, al detenerse el movimiento entre placas del reómetro, ya no aparecen oscilaciones del tiempo de vuelo.

La región IV, es la fase de estudio que se comentará con más detalle en las siguientes secciones. Consiste en la aplicación de una rampa de esfuerzo creciente lineal en el tiempo. En el ensayo correspondiente a los puntos negros no hay campo aplicado mientras que en el correspondiente a los puntos azules, sí.

En la región V, se deja de aplicar la rampa lineal creciente de esfuerzo, dejando en reposo el fluido. En el caso de la curva azul se continúa aplicando un campo magnético de 40 mT.

En la región VI, por último, se deja de aplicar el campo magnético para el caso del ensayo correspondiente a los puntos azules, mientras que esta región es continuación de la región V del ensayo correspondiente a los puntos negros.

4.4.1 Ensayo 1, fracción de volumen baja

Aunque el objetivo primordial de esta sección 4.4 es el estudio del proceso de ruptura en fluidos MR de alta fracción de volumen, se comenzará el estudio con el mismo fluido MRNice, pero a baja concentración. Para obtener una mínima resolución mediante los ensayos ópticos es preciso emplear una fracción de volumen baja y una distancia entre placas pequeña. Cuanto mayor sea la fracción de volumen la opacidad de estos fluidos aumenta llegando a ser excesiva para realizar capturas mediante microscopía. Además, se toman imágenes en reflexión, por lo que la placa superior del reómetro debe estar cerca de la placa inferior para poder tener mayor intensidad de luz.

Estas condiciones han hecho que se haya diluido el fluido MRNice concentrado hasta el 5% en fracción de volumen y que se haya usado una distancia entre placas de 0.3 mm. Desde el punto de vista acústico estos dos factores complican las medidas porque, al ser la fracción de volumen tan pequeña, los cambios suelen ser menores y, como la distancia entre placas es también muy pequeña y el fluido tan atenuante, la señal adquirida interfiere con el final de la señal de excitación. Este ensayo es de gran interés porque nos va a permitir relacionar los resultados mediante tres técnicas diferentes, lo cual posteriormente nos ayudará a interpretar los resultados obtenidos a otras fracciones de volumen mayores.

Este ensayo óptico, como se ha dicho, sería imposible de realizar para fracciones de volumen altas, poniendo de manifiesto la necesidad de la utilización de otra técnica complementaria como son los ultrasonidos para poder lograr una mejor comprensión del proceso a estas concentraciones.

Se ha observado que la variación del tiempo de vuelo es una magnitud más sensible a los cambios en el fluido producidos en estos ensayos que la variación en la amplitud. Por ello, es la única magnitud acústica que se analiza en esta sección.

4.4.1.1 Resultados reológicos

A continuación se presentan las curvas de flujo representando el esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación para el *ensayo 1*. En la figura 4.39 se pueden ver estos resultados en escala doble logarítmica mientras que, en la figura 4.40, se pueden apreciar en escala doble lineal.

Los esfuerzos umbrales se han obtenido como fue explicado en el capítulo 2. Además, se recuerda que la velocidad de deformación a partir de la cual se pueden obtener resultados concluyentes con esta técnica es 0.1s^{-1} .

El esfuerzo umbral estático según este ensayo estaría alrededor de los 35 Pa considerando que 10^{-3}s^{-1} es el punto donde la velocidad de deformación empieza a ser diferente de cero.

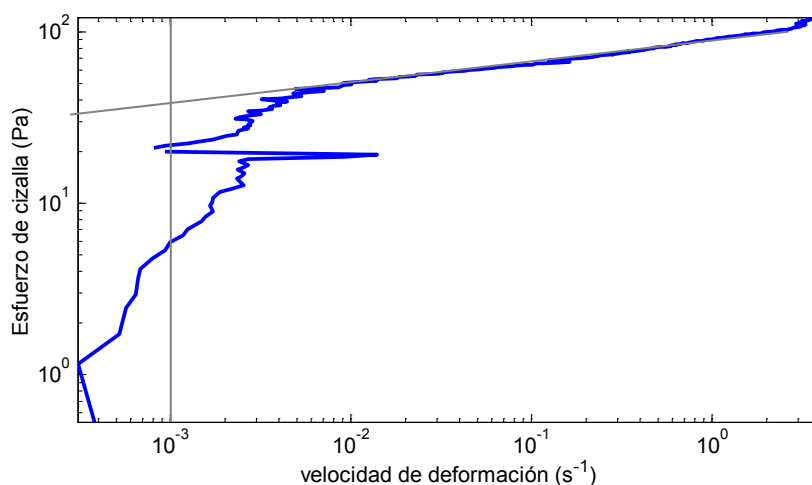


Figura 4.39. Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble logarítmica para el *ensayo 1*. Esta representación nos permite obtener el esfuerzo umbral estático.

En la figura 4.40 y de acuerdo con lo explicado en el capítulo 2, no es posible obtener un valor de esfuerzo umbral dinámico, pues es necesario considerar un rango de velocidades de deformación mayor, típicamente entre 10s^{-1} y 1000s^{-1} ; por lo tanto, extrapolar aquí el valor del esfuerzo umbral dinámico no sería fiable. Por otro lado, no se pudo realizar este ensayo con velocidades de deformación mayores porque las condiciones para lograr la integración de las

tres técnicas provocaban que a altas velocidades de deformación el fluido fuese eyectado debido a su baja viscosidad y concentración.

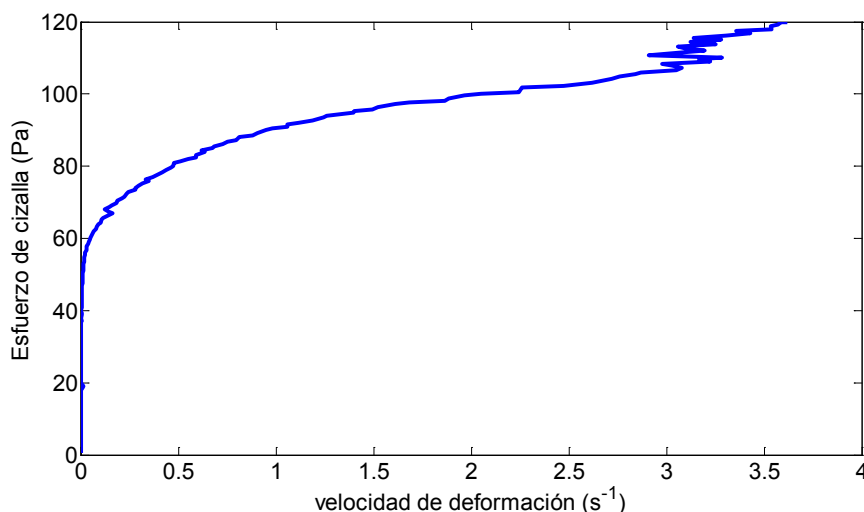


Figura 4.40. Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble lineal para el *ensayo 1*.

4.4.1.2. Resultados ópticos

En la figura 4.41, se presentan las fotos tomadas en diferentes momentos durante el *ensayo 1*. Realmente las imágenes A (no hay campo magnético aplicado, región I figura 4.38) y B (se aplica el campo magnético, región III figura 4.38) pertenecen al proceso previo de preparación del fluido, y L (se retira el campo magnético, región VI figura 4.38) corresponde a una imagen una vez finalizado el ensayo. De este modo se quiere reflejar en qué estado comienza y termina el fluido.

Las imágenes obtenidas durante las medidas reológicas mostradas anteriormente van de la C a la K y están resaltadas en rojo. Por ello, en primer lugar se fotografía el fluido MR sin campo magnético (A), posteriormente se aplica un campo de 40mT (B) y, tras un periodo de estabilización, se inicia la rampa de esfuerzo de cizalla hasta 120 Pa (C-K). Por último se deja de aplicar tanto el esfuerzo como el campo magnético (L).

Las fotografías tienen un tono grisáceo, ya que es éste el color natural del fluido MR. Además, al ser fluidos opacos y estar observando con luz reflejada, la cantidad de luz es

pequeña. Los agregados de partículas se corresponden con las tonalidades más claras, mientras que las oscuras corresponden a zonas de fluido entre partículas (fotos H e I, figura 4.41). En las fotos J y K de la figura 4.41, por el contrario, los huecos claros corresponden a grandes huecos generados entre las partículas que permiten ver la placa superior del reómetro. Cuando se aplica el campo magnético (B) se pasa de una suspensión de partículas a un fluido cuyas partículas están más orientadas y formando una estructura, provocando un cambio sutil en el contraste de la imagen en comparación con la imagen inicial (A) donde no hay campo magnético aplicado. Estas estructuras están ancladas a las placas del reómetro por causa del campo magnético. Este anclaje será el que dificulte el movimiento de las placas cuando se le aplique un esfuerzo de cizalla. El esfuerzo de cizalla comienza a aplicarse en (C), pero hasta los 45 Pa, imagen (F), ningún cambio en la estructura es plausible. Este valor de esfuerzo se correlaciona razonablemente bien con el esfuerzo umbral estático calculado anteriormente (35 Pa). En las imágenes (F) y (G) se observa una evolución sutil de la estructura formada, donde van apareciendo agregados de partículas. Debido al efecto del campo magnético, las partículas no rotan libremente, sino que tienden a agregarse formando estructuras más robustas como consecuencia de la posible inclinación que adopten. Podría darse el deslizamiento de estructuras en las placas, aunque sólo es una hipótesis, pues ópticamente no se podría discriminar. A partir de esa imagen (H), que corresponde a un esfuerzo aplicado de 75 Pa y hasta la imagen (K), la evolución de la estructura es mucho más evidente. El proceso de agregación tiene lugar posiblemente porque la microestructura empieza a romperse dejando de estar anclada a las placas del reómetro, generando el movimiento interno de las formaciones, favoreciendo que haya más interacciones entre las partículas y apareciendo aglomerados de mayor tamaño. Al no estar anclados y aumentar el esfuerzo de cizalla, los agregados rotan igualmente generando un aclarado del fluido e incluso introduciéndose burbujas de aire. Este aumento de la rotación se ve traducido en un aumento de la velocidad de deformación girando la geometría más rápido. En la imagen (L), el campo magnético ha sido suprimido al igual que el esfuerzo aplicado, sin embargo, se observan estructuras remanentes (agregados) que previsiblemente han sedimentado sobre el plato inferior.

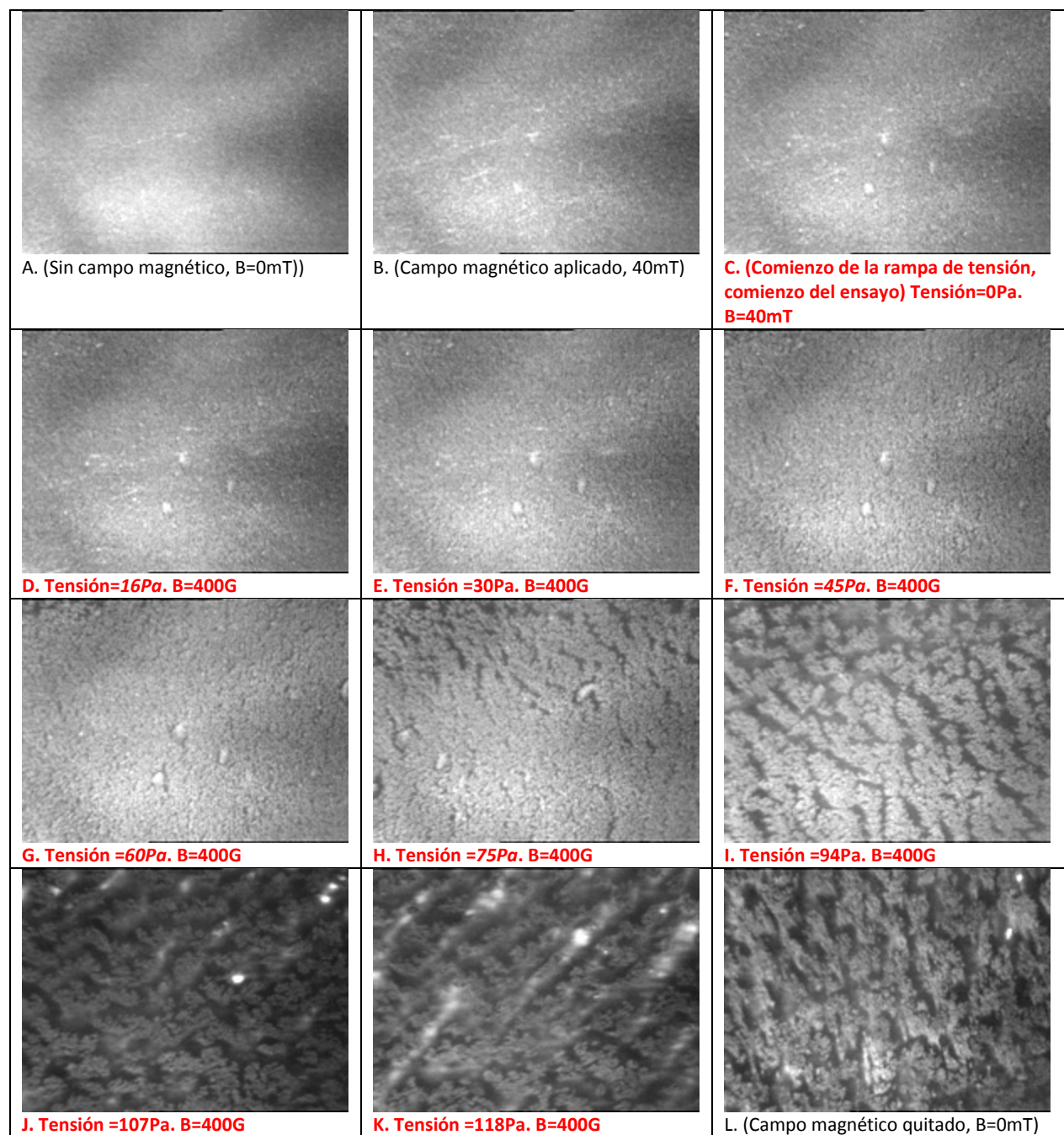


Figura 4.41. Imágenes obtenidas durante el *ensayo 1*. La secuencia temporal de las imágenes va de izquierda a derecha y de arriba abajo. A y B han sido tomadas previamente al ensayo y L una vez que este fue acabado. Las imágenes correspondientes al ensayo reológico van de la C a la K.

En consecuencia, de estas fotografías se podría suponer que hasta que se alcanza un esfuerzo de 35 Pa la estructura permanece intacta y a partir de 35 Pa se produce un primer reordenamiento previsiblemente causado por un deslizamiento en paredes. A partir de los 75 Pa la variación de la microestructura es mucho más evidente. Desde el punto de vista óptico

estos puntos están claramente relacionados con el esfuerzo umbral estático y dinámico respectivamente.

4.4.1.3. Resultados acústicos

En la figura 4.42, se presenta la variación del tiempo de vuelo frente al esfuerzo de cizalla obtenido en el *ensayo 1*; rampa de esfuerzo de cizalla hasta 120 Pa bajo la acción de un campo magnético de 40 mT. Como con las técnicas anteriores, es complicado obtener conclusiones sobre lo que está sucediendo al comienzo del ensayo debido a que los cambios son muy débiles. Inicialmente parece que hay una leve disminución del tiempo de vuelo en el que aparecen cambios de pendiente, alcanzándose un mínimo en torno a los 70 Pa, a partir del cual el tiempo de vuelo empieza a crecer de manera drástica. Tras esta subida, se pueden observar grandes variaciones del tiempo de vuelo, presentando una tendencia a disminuir en mayor medida según se aumenta el esfuerzo aplicado.

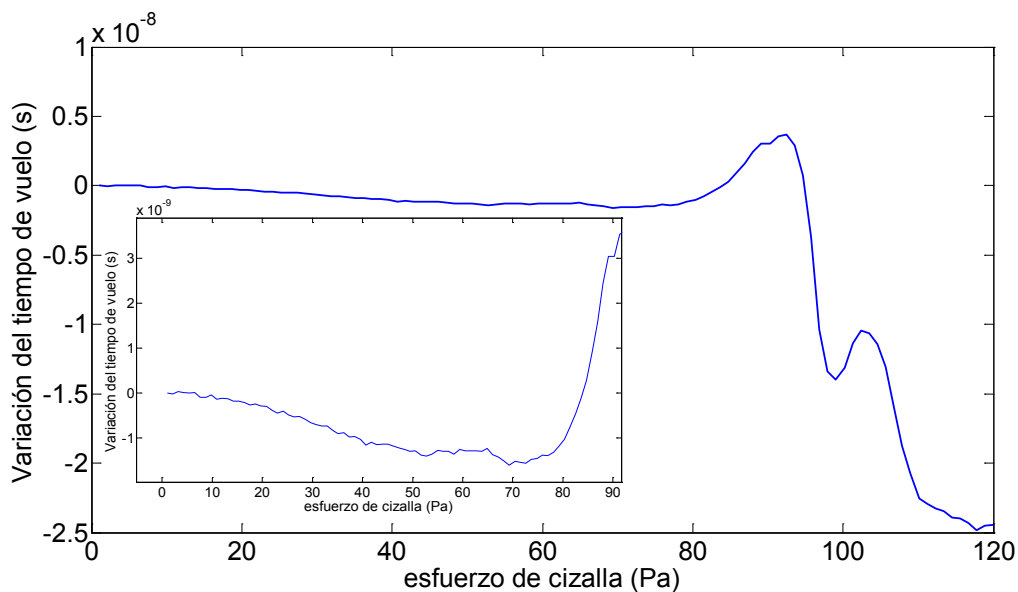


Figura 4.42. Variaciones del tiempo de vuelo en función del esfuerzo de cizalla aplicado correspondiente al *ensayo 1*. El recuadro interior es una ampliación de la figura pero centrado en los primeros 90 Pa.

4.4.1.4. Conclusiones

Los ensayos reológicos apuntan a que el esfuerzo umbral estático está situado en torno a los 35 Pa. Por otro lado, el esfuerzo umbral dinámico no se puede obtener con claridad porque no se han alcanzado velocidades de deformación suficientemente grandes.

En el caso de los resultados ópticos no hay más limitaciones que la capacidad de percepción de la evolución de las estructuras, mientras que en los acústicos, en principio, no habría de ningún tipo. Así pues, desde los 45 Pa (que coincide con el esfuerzo umbral estático obtenido desde el punto de vista reológico) y hasta los 70 Pa (previsiblemente el valor que tendría el esfuerzo umbral dinámico), desde el punto de vista acústico, se está inmerso en una región donde se aprecia una suave tendencia a la disminución del tiempo de vuelo. Esta región podría asociarse con el reordenamiento visto ópticamente en el que se observa cómo las estructuras se van agregando poco a poco. Este comportamiento acústico, al ser tan sutil, no revela ningún efecto especialmente significativo que permita discriminar la aparición de algún proceso umbral en este rango de esfuerzo. No obstante, el mínimo que acústicamente aparece a los 70 Pa está claramente relacionado con la variación brusca de la microestructura observada ópticamente y con lo que seguramente sería el esfuerzo umbral dinámico. A partir de este punto, se observan grandes variaciones del tiempo de vuelo que serían consecuencia de la aparición de estructuras móviles mucho más gruesas, de la presencia de zonas de fluido libres de partículas y del movimiento de la placa del reómetro. Por lo tanto, por medio de estas tres técnicas se podría estimar que el esfuerzo umbral estático se correspondería con los 35 Pa y el dinámico, con los 70 Pa.

El comportamiento acústico, además, está sustentado también por la teoría de Ahuja. Hay que recordar que este modelo fue utilizado anteriormente para explicar la microestructura formada a bajas fracciones de volumen. Para este fluido no se puede utilizar el modelo directamente, pues no se ha realizado la caracterización acústica de sus componentes ni del fluido en sí, sin embargo, se podrán utilizar las tendencias observadas en otros líquidos con objeto de explicar, al menos cualitativamente, el resultado mostrado en la figura 4.42. El aumento del esfuerzo de cizalla puede provocar la ruptura de las estructuras, siendo la

presencia del campo magnético la que favorece la reconstrucción de las mismas. Según la figura 4.41, en las fotografías de la F a la I, se puede apreciar cómo las estructuras que se desarrollan son cada vez más gruesas, posiblemente porque una desviación de las cadenas de la dirección vertical debido al esfuerzo de cizalla, favorece la interacción con estructuras cercanas. Esto podría estar relacionado con la tendencia observada en otros fluidos MR (sección 4.1.2.3) para los cuales se produce una disminución del tiempo de vuelo (y, por lo tanto, un aumento de la velocidad) al aumentar el grosor de las estructuras formadas, de acuerdo con el modelo de Ahuja.

En la figura 4.43 se puede apreciar esta relación predicha por el modelo de Ahuja entre la velocidad de propagación y la anchura de las estructuras para dos de los líquidos estudiados en apartados previos.

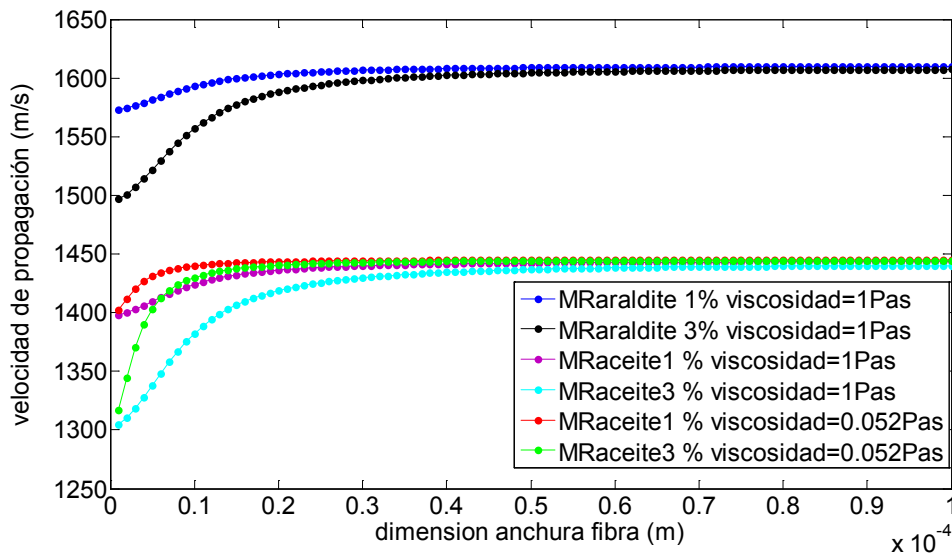


Figura 4.43. Velocidad de propagación en función de la anchura de la fibra para las fracciones de volumen de 1% y 3% de los fluidos MRaceite y MRaraldite. Se ha variado la viscosidad para mostrar que el comportamiento es el mismo.

Por último, si la rotación de las estructuras favorece la aparición de zonas más limpias de partículas, estas regiones también contribuirían a que el tiempo de vuelo disminuya (la velocidad de propagación aumentase).

En consecuencia, usando la información complementaria de las tres técnicas experimentales se podría afirmar que:

La determinación del proceso de ruptura de la microestructura para este fluido es compleja, sin embargo, por medio de las tres técnicas se han podido identificar los dos esfuerzos umbrales. El esfuerzo umbral estático en torno a los 35-45 Pa, sustentado fundamentalmente en los resultados reológicos y ópticos, mientras que el esfuerzo umbral dinámico estaría situado en torno a los 70-75 Pa, sustentado en este caso de forma más clara por los resultados acústicos y ópticos. A través de estos resultados, se concluye que las técnicas acústicas son un muy buen complemento para la caracterización reológica de los fluidos MR.

4.4.2. Ensayo 2, fracción de volumen alta

Con el ensayo anterior se ha tratado de relacionar lo que ocurre desde un punto de vista reológico con los resultados acústicos y las imágenes ópticas para un fluido MR con baja fracción de volumen de partículas bajo la acción de un campo magnético, demostrando que las técnicas son complementarias. No obstante, el mayor interés radica en estudiar el proceso de ruptura en fluidos MR con alta fracción de volumen, pues son los que habitualmente se usan en las aplicaciones prácticas. Estos fluidos presentan la desventaja de ser muy opacos y, por lo tanto, no se pueden aplicar técnicas de videomicroscopía para su estudio. Como se describió anteriormente, en este ensayo se va a aplicar una rampa de esfuerzo de cizalla hasta 1000 Pa a un fluido MR con una fracción de volumen de partículas del 30 % y con una distancia entre placas del reómetro de 1 mm. Se estudiarán dos casos, sin campo aplicado y con un campo aplicado de 40 mT.

El ensayo en el que no se aplica un campo magnético se presenta principalmente como un elemento de referencia que sirva para comparar y para hacer énfasis en el efecto que supone la aplicación del campo a estos fluidos MR.

4.4.2.1. Resultados reológicos

Al igual que en el caso anterior y por usar una estructura paralela a la hora de presentar y discutir los resultados, se presentan primeramente dos figuras:

En la figura 4.44, se muestra el esfuerzo de cizalla aplicado en función de la velocidad de deformación de los dos ensayos, sin campo y con campo, en escala doble logarítmica. Esta figura nos permite determinar el esfuerzo umbral estático. El criterio determinado para considerar que la velocidad de deformación sea distinta de cero es igual que en el *ensayo 1*, esto es, que tome un valor de 10^{-3} s^{-1} . Cuando hay campo magnético aplicado se puede estimar que el esfuerzo umbral estático está en torno a los 170 Pa, aunque hay que tener en cuenta que si se varía el criterio para considerar cuándo la velocidad de deformación es distinta de cero o si se toma una región de velocidades de deformación un poco mayores o menores, este valor puede variar. Para valores de velocidad de deformación menores que 0.1 s^{-1} no se pueden obtener resultados concluyentes, aunque las variaciones observadas a baja velocidad de deformación podrían ser debidas a deslizamientos de las estructuras inducidas por el campo en la pared.

Para el caso en el que no hay campo aplicado se podría considerar la existencia de un muy pequeño esfuerzo umbral que retomaremos en la discusión de la figura 4.45.

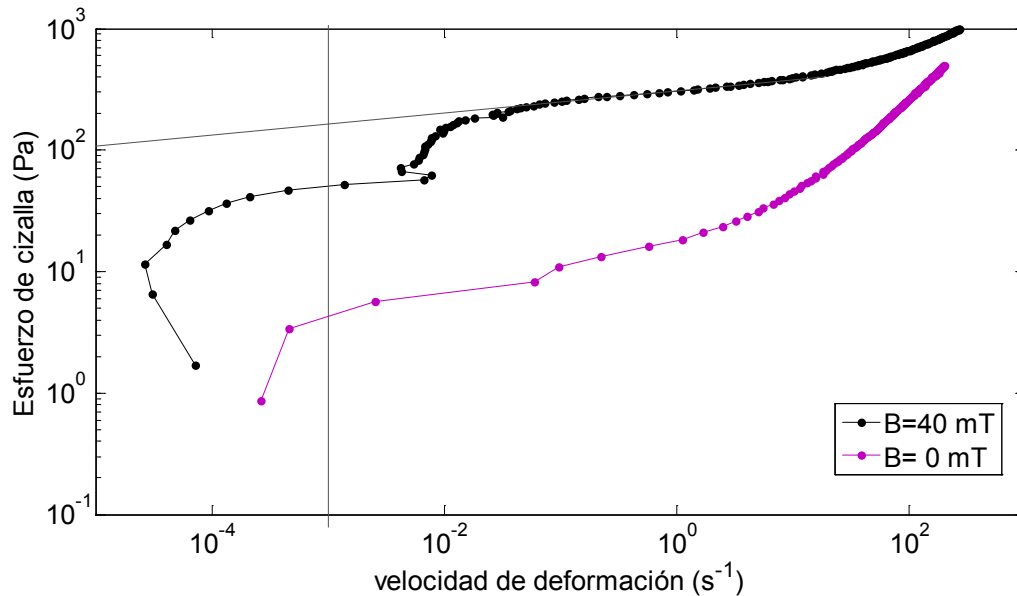


Figura 4.44. Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala doble logarítmica para el *ensayo 2*. Los puntos negros representan los resultados para el ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT, mientras que los puntos morados representan el ensayo cuando no hay campo magnético aplicado.

En la figura 4.45, se presentan los mismos resultados que en la figura 4.44, pero esta vez en escala lineal. Esto nos permite obtener el esfuerzo umbral dinámico y poder aclarar el comportamiento a campo cero. Cuando el campo aplicado son 40 mT se observa el típico comportamiento de plástico de Bingham, de modo que extrapolando los resultados para altas velocidades de deformación se obtiene que el esfuerzo umbral dinámico es de 465 Pa para un intervalo de 1 s^{-1} y 275 s^{-1} .

A campo cero el comportamiento es fluidificante. Esto es, se parte de una viscosidad muy grande (se recuerda que la viscosidad es la constante de proporcionalidad entre el esfuerzo de cizalla y la velocidad de deformación) viéndose incluso un pequeño esfuerzo umbral de unos 10 Pa para un intervalo de 1 s^{-1} y 200 s^{-1} , para que luego la viscosidad empiece a disminuir hasta alcanzar un valor prácticamente constante. Esto se debe a que posiblemente existen todavía algunos agregados isotropos de partículas antes de comenzar el experimento. Así, cuando se empieza a cizallar se rompen los agregados y la viscosidad cae hasta un valor constante cuando ya no hay agregados y las partículas están libres.

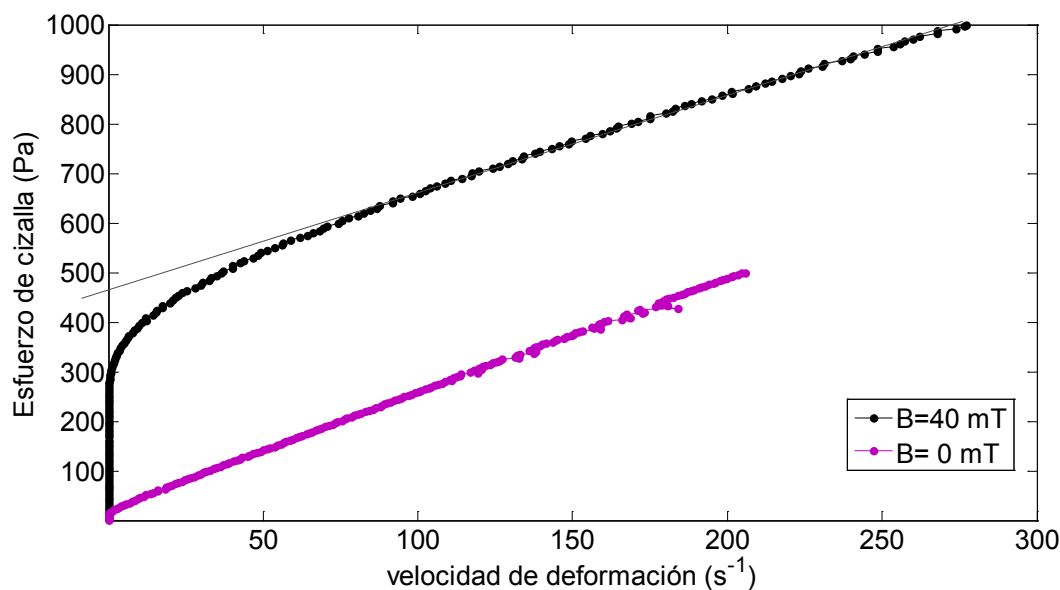


Figura 4.45. Representación del esfuerzo de cizalla en función de la velocidad de deformación en escala lineal para el ensayo 2. Los puntos negros representan los resultados para el ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT, mientras que los puntos morados representan el ensayo cuando no hay campo magnético aplicado.

4.4.2.2. Resultados acústicos

En la figura 4.46, se presentan los resultados de las variaciones de tiempo de vuelo en función del esfuerzo de cizalla para los casos en los que no hay un campo magnético aplicado, figura *a*, y cuando sí hay un campo magnético aplicado de 40 mT, figura *b*.

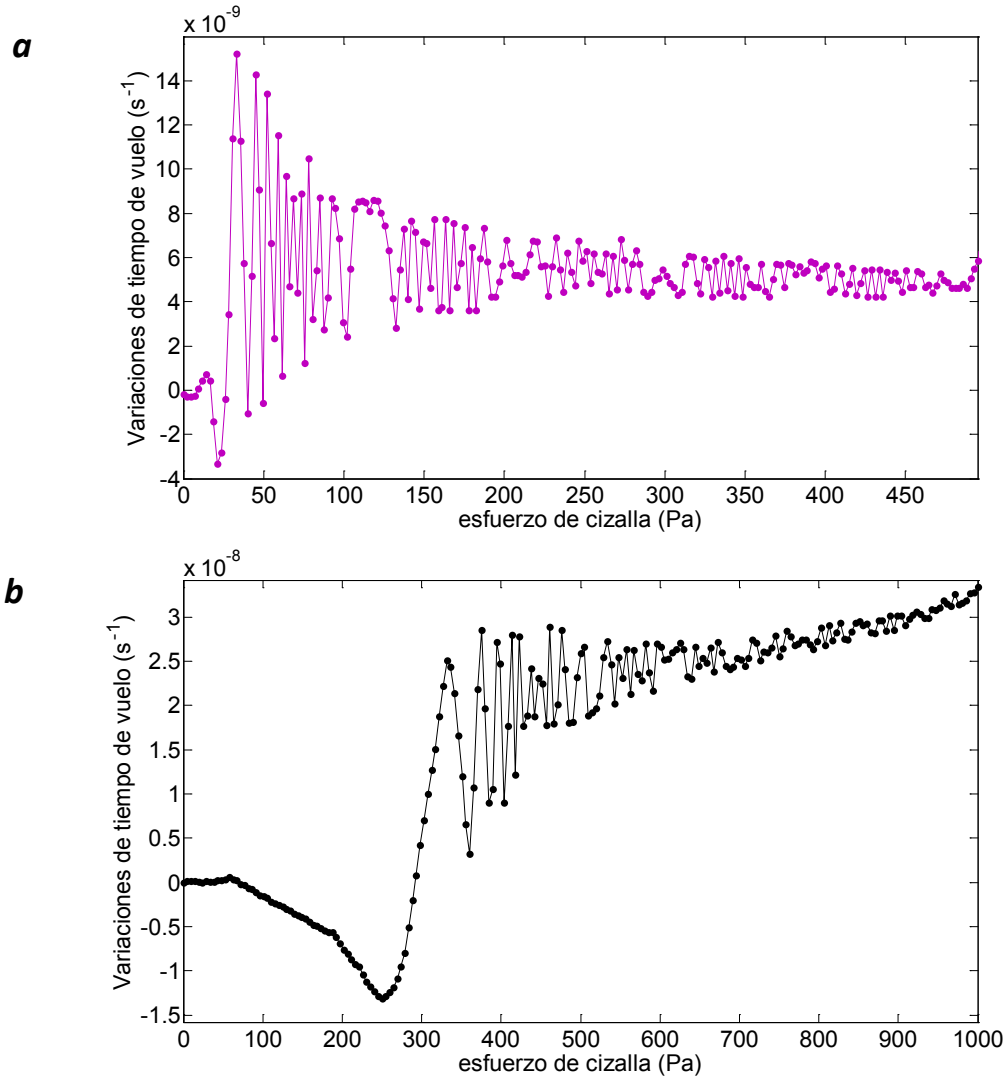


Figura 4.46. Variación del tiempo de vuelo en función del esfuerzo de cizalla usado para el *ensayo 2*. La figura *a* corresponde al ensayo en el que no hay campo magnético aplicado. La figura *b* corresponde al ensayo bajo la influencia de un campo magnético de 40 mT de intensidad.

En la figura 4.46a, se puede apreciar cómo tras unos 8 Pa el tiempo de vuelo empieza a oscilar. Las oscilaciones, como se comentó en el inicio de este apartado a través de la figura

4.38, están relacionadas sin ningún tipo de duda con la rotación de la placa superior, que debido a una pequeña falta de paralelismo provoca estas variaciones.

En la figura 4.46b, se pueden apreciar diferentes cambios de tendencias en las variaciones de tiempo de vuelo. Se observan dos cambios de pendiente a los 57 Pa y a los 177 Pa, siendo este último más acentuado que el anterior. A los 250 Pa aparece un mínimo muy marcado que da inicio a oscilaciones del tiempo de vuelo, disminuyendo su amplitud según aumenta el esfuerzo aplicado.

4.4.2.3. Conclusiones

A falta de medidas fiables a bajas velocidades de deformación ($< 0.1 \text{ s}^{-1}$), todo parece apuntar a que en este caso de nuevo hay una clara correlación entre las medidas reológicas y los resultados acústicos.

Para el ensayo bajo el cual no hay campo magnético aplicado, se puede observar que con ambas técnicas se aprecia un pequeño esfuerzo umbral inicialmente de unos 8-10 Pa. Éste se asocia a la presencia de agregados isótropos que necesitan un pequeño esfuerzo aplicado para ser destruidos. Una vez que son destruidos, se ve la aparición de oscilaciones en el tiempo de vuelo que se corresponden con el aumento lineal de la velocidad de deformación del sistema. Este comportamiento, junto a los resultados presentados inicialmente en la figura 4.38, donde las oscilaciones observadas en el tiempo de vuelo en la región II quedaban relacionadas directamente con el movimiento de la placa superior al hacerlo rotar a una velocidad de deformación constante, permiten concluir que cuando no hay campo magnético aplicado el fluido rota por efecto del esfuerzo de cizalla, viéndose traducido en oscilaciones del tiempo de vuelo por una falta de paralelismo entre placas.

Se analizan ahora las relaciones entre los resultados acústicos y reológicos del ensayo bajo la acción de un campo magnético aplicado de 40 mT. Para velocidades de deformación menores de 0.1 s^{-1} (en este ensayo corresponde con 252 Pa), desde el punto de vista reológico, es arriesgado obtener conclusiones debido a las condiciones en que se realizaron los ensayos. Sin embargo, se puede vislumbrar que aparece un posible deslizamiento de las estructuras de

las placas del reómetro. La obtención del esfuerzo umbral estático está fijado en 170 Pa (sí es fidedigno, pues se obtiene extrapolando valores del esfuerzo umbral que corresponden a velocidades de formación mayores de 0.1 s^{-1}). Desde el punto de vista acústico, en el comienzo de este ensayo (hasta los 250 Pa) las variaciones de tiempo de vuelo son mucho más notables que en el *ensayo 1*. Aparece una disminución del tiempo de vuelo hasta los 250 Pa, en los que se aprecian dos cambios de pendiente. Estos procesos podrían estar relacionados con un posible proceso de reordenamiento a nivel microscópico de las partículas por el efecto de la aplicación de un esfuerzo de cizalla y un campo magnético como se observó en el *ensayo 1* a través de la figura 4.41 y la argumentación en la conclusión de ese mismo ensayo. Por lo tanto, el segundo cambio de pendiente a 177 Pa podría estar relacionado directamente con el esfuerzo umbral estático. En este régimen de bajas velocidades de deformación, acústicamente no hay ningún impedimento para poder obtener conclusiones fiables; sin embargo, el primer cambio de pendiente claro que ocurre a los 57 Pa es difícil de asociar con algún fenómeno, pues se está en la región en la que desde el punto de vista reológico no se puede asegurar nada. Sin referencias reológicas, se podría insinuar que este punto está relacionado con un reordenamiento de estructuras debido al comienzo de un leve desplazamiento de las mismas respecto a las placas, previo a alcanzar el esfuerzo umbral estático

Si se consideran las conclusiones obtenidas en el primer aparatado al analizar el *ensayo 1*, el mínimo a 250 Pa se podría identificar con el esfuerzo umbral dinámico. Como se comentó anteriormente, la aparición del mínimo acústico correspondía ópticamente con la imagen en la que las estructuras empezaban a variar en gran medida. Además, este hecho quedaría reforzado con el comienzo de las oscilaciones del tiempo de vuelo justo después del mínimo, que, como se ha explicado, están relacionadas con la rotación de la placa del reómetro.

Así pues, se podría concluir que el esfuerzo umbral estático se correspondería con un valor de unos 170-177 Pa, observado tanto con el segundo cambio de pendiente del tiempo de vuelo como desde el punto de vista reológico. Por otro lado, en la determinación del esfuerzo umbral dinámico hay mayor ambigüedad, pues, aunque desde el punto de vista acústico es coherente afirmar que este esfuerzo umbral se encontraría a 250 Pa, desde el punto de vista

reológico parece obtenerse a esfuerzos mayores. Sin embargo, y dada la ambigüedad de los datos reológicos, el resultado acústico obtenido es más que razonable.

Capítulo 5

Conclusiones y líneas de trabajo futuras

5.1. Conclusiones

Para la realización de los trabajos experimentales de la Tesis se han desarrollado materiales y técnicas que se enumeran a continuación.

- Se han sintetizado muestras no comerciales de fluidos MR estables y se han analizado sus propiedades acústicas bajo la influencia de diversos factores.
- Se ha propuesto y llevado a cabo una técnica de análisis óptico, que se ha basado en la realización de muestras sólidas para poder tomar fotografías de la microestructura de los MR tanto bajo la acción de un campo magnético como sin él.
- Se ha puesto a punto un montaje experimental que permite medir velocidades de propagación y atenuaciones de fluidos bajo la acción o no de un campo magnético externo, pudiendo variar condiciones como la temperatura, la duración de la medida, la intensidad o la orientación del campo externo.
- Se ha adaptado un montaje de videomicroscopía y otro acústico a un montaje experimental reológico, lo cual ha permitido realizar medidas con las tres técnicas a un mismo tiempo con objeto de caracterizar la respuesta de los fluidos MR a la tensión de cizalla.

Se resumen ahora los resultados y las conclusiones por apartados.

Efecto de la fracción de volumen sin campo aplicado

Se ha observado que un fluido MR se comporta como una suspensión de partículas cuando no hay campo magnético aplicado.

Al aumentar la fracción de volumen de partículas, disminuye la velocidad de propagación independientemente del fluido.

Dependiendo del fluido base, se pueden encontrar diferencias en el comportamiento de la atenuación. Para el fluido MRaceite aparece un máximo de atenuación a 0.16 de fracción de volumen de partículas de valor 3.5 dB/mm, mientras que para el MRaraldite la atenuación se mantiene constante en un amplio rango de fracciones de volumen (0.03-0.25) con un valor de 0.3 dB/mm.

A partir de las fotografías tomadas de las muestras, se ha apreciado que éstas presentan una microestructura propia de una suspensión, estando presente algunas partículas agregadas.

Se han aplicado con éxito dos modelos de propagación acústica en suspensiones: el modelo de Urick y el modelo de Harker y Temple. En lo que respecta a las predicciones sobre las velocidades de propagación ultrasónica, la velocidad es poco sensible al radio de las partículas en el caso del MRaraldite, resultando más sensible a este parámetro el caso del MRaceite. Respecto a la atenuación, las predicciones de los modelos coinciden a bajas fracciones de volumen con los valores experimentales, mientras que a altas fracciones de volumen es el modelo de Harker y Temple el que predice mejor las medidas. Usando los modelos tras su ajuste con los resultados experimentales de velocidad y atenuación, se obtiene que los radios de las partículas que forman las suspensiones de MRaraldite y MRaceite son 4 micras y 9 micras respectivamente. Este ajuste es bastante bueno si se considera que la distribución del tamaño estaba centrado en 2.5 micras.

Efecto de fracción de volumen con campo aplicado

Se ha observado que la aplicación de un campo magnético paralelo a la propagación acústica provoca un aumento de la velocidad de propagación y de la atenuación al ser comparadas con las propiedades de los fluidos cuando no están bajo la acción del campo magnético aplicado. Este comportamiento se justifica por el cambio en la microestructura que provoca el aclarado de la suspensión y por la aparición de estructuras absorbentes.

Respecto a la velocidad de propagación, el MRaceite y el MRaraldite se comportan de manera similar al variar la fracción de volumen de partículas, aunque los cambios son más pronunciados para el MRaceite. El cambio máximo en velocidad corresponde a un 3%.

Respecto a los cambios en la atenuación, al comparar los fluidos MR bajo la acción de un campo magnético paralelo al campo acústico y cuando no hay campo aplicado, se aprecia que el comportamiento relativo en función del aumento de fracción de volumen es similar a cuando no hay campo aplicado. Sin embargo, cuantitativamente, la atenuación aumenta hasta un 33% para el MRaceite y hasta un 150% para el MRaraldite con el campo magnético aplicado.

Según las fotos de la microestructura para las muestras de diferentes fracciones de volumen se afirma que para fracciones de volumen bajas, 0.01 y 0.03, se parecen a suspensiones de fibras, mientras que, para fracciones de volumen moderadas y altas, la estructura visualizada es laberíntica apareciendo numerosos enlaces entre cadenas y dando lugar a oquedades entre las estructuras.

Se ha realizado una revisión bibliográfica de posibles modelos que podrían ajustarse a la microestructura mostrada en las fotografías, llegando a las siguientes conclusiones para cada modelo:

- Modelo de Ahuja: Predice correctamente el comportamiento en velocidad y atenuación para bajas fracciones de volumen (0.01 y 0.03). Pese a la polidispersión de tamaños de la muestra y su complejidad, predice el diámetro de manera razonable al

comparar con los diámetros observados en las fotografías; sin embargo, no tiene prácticamente sensibilidad frente a la longitud.

- **Modelo de Biot:** Si bien no predice cuantitativamente bien las estructuras formadas dependiendo de la fracción de volumen, se puede llegar a la importante conclusión de que bajo la aplicación de un campo magnético las partículas que forman los fluidos MR se reorientan, pero dando lugar a una estructura poco consolidada. Debido a ello se puede entender así que las variaciones sean más importantes en atenuación que en velocidad, pues este último parámetro depende fuertemente de la compresibilidad. Si la consolidación es baja, implica que no diferirá demasiado de la compresibilidad observada en una suspensión
- **Modelo micromecánico:** A partir de la predicción de la velocidad de propagación, se aprecia según este modelo una disminución de la relación de aspecto de las estructuras formadas al aumentar la fracción de volumen. Desde el punto de vista elástico, indica que la aparición de estructuras en la perpendicular al campo magnético aplicado y la presencia de enlaces entre estructuras provocan un corte de la uniformidad y continuidad de las estructuras.
- **Modelo Reuss y Voigt modificado:** A partir de las conclusiones obtenidas con los otros modelos y usando un modelo unidimensional muy sencillo que considera la formación de estructuras paralelas y perpendiculares junto a la presencia de partículas en suspensión, se llega a reproducir cualitativamente el comportamiento observado experimentalmente de la velocidad de propagación en función de la fracción de volumen. Se llega a este resultado si se tiene en cuenta que solamente la zona de contacto entre dos partículas que se encuentren juntas, contribuye a formar una estructura ordenada, mientras que el resto de la partícula contribuye como si formara parte de la suspensión.

Sedimentación

Se puede estudiar el proceso de sedimentación propio de estos fluidos MR por medio del análisis de las variaciones de velocidad y atenuación, pues estos parámetros son sensibles a las

variaciones de fracción de volumen. Además, se ha observado cómo la aplicación de un campo magnético externo mejora e incluso inhibe el proceso de sedimentación de partículas.

Temperatura

Se ha comprobado que al aumentar la temperatura disminuye la velocidad de propagación independientemente del fluido MR estudiado. Al aplicar un campo magnético, la disminución de la velocidad de propagación es más acusada aún. En cuanto a la atenuación, se aprecia que para el MRaraldite un aumento de la temperatura implica una disminución de la atenuación, mientras que para el MRC se observa un aumento de la misma. Para el caso del MRaraldite, la dependencia de las propiedades con la temperatura está regida por el comportamiento del fluido base, el Araldite, en el que se observan las mismas tendencias. Para el caso del MRC esta hipótesis no se puede demostrar, pues no se conoce la composición del mismo.

Intensidad de campo, histéresis y anisotropía

En el intervalo estudiado de intensidades de campo magnético, 20mT-212mT, aplicado paralelo al campo acústico, un aumento en la intensidad implica un aumento de la velocidad de propagación y de la atenuación. Este comportamiento está relacionado con el reordenamiento de las estructuras y con una disminución de la compresibilidad. Esta tendencia es característica en los fluidos estudiados siendo el aumento en la velocidad de propagación mayor para el fluido MRaceite, posteriormente para el MRaraldite y el menor cambio corresponde al MRC. Para el caso de la atenuación, sin embargo, el mayor cambio se produce para el MRC, siendo menor para el MRaceite y aún más para el MRaraldite.

Los fenómenos de histéresis aparecen tanto al estudiar un ciclo de intensidad de campo magnético por medio de la variación de la velocidad de propagación como analizando la atenuación. Este fenómeno, sin embargo, es mayor para la atenuación que para la velocidad de propagación. Esto puede estar relacionado con que, al dejar de aplicar una intensidad de campo, la compresibilidad vuelve a aumentar, reduciendo la intensidad de interacción entre partículas llegando a valores similares como los que se alcanzan en las condiciones de

suspensión. Sin embargo, la disposición de las partículas se recupera en menor medida, pese a la disminución del campo, pues hay otros factores, como la rugosidad de las partículas o la misma viscosidad del fluido, que dificultan la redispersión de las mismas.

Respecto a la anisotropía, se observa que tanto la velocidad de propagación como la atenuación es mayor cuando el campo magnético se aplica en la dirección paralela al campo acústico que cuando se aplica en la dirección perpendicular. Por ello, si se busca un procedimiento para obtener el mayor cambio en las propiedades acústicas, lo más efectivo es pasar de aplicar un campo en la dirección paralela al campo acústico a aplicarlo en una dirección perpendicular.

Reología

Se ha mostrado que los ultrasonidos permiten estudiar el proceso de ruptura de las estructuras de un fluido MR bajo la acción de un campo magnético y un esfuerzo de cizalla. Esta técnica ultrasónica permite obtener un mejor conocimiento sobre este proceso al proporcionar una información complementaria a la obtenida mediante un reograma.

Principales contribuciones originales

A modo de conclusión se destacan las principales aportaciones de esta Tesis:

- Es la primera vez que se estudia experimentalmente la variación de la atenuación en los fluidos MR debido a factores como el efecto de la fracción de volumen, la temperatura, la sedimentación, la intensidad de campo y la anisotropía.
- Es la primera vez que se analiza el efecto de un amplio rango de fracciones de volumen (0.01-0.35) en las propiedades acústicas respecto a dicha fracción de volumen, relacionándolo a la vez con la microestructura formada.
- Es la primera vez que se comparan entre sí los modelos propuestos en la Tesis para estudiar la propagación de ondas ultrasónicas en fluidos MR en función de la

microestructura observada, de la fracción de volumen y de la aplicación o no de campo magnético para predecir los resultados experimentales obtenidos.

- Es la primera vez que se utiliza una técnica ultrasónica como complemento a las técnicas reológicas para obtener un mejor conocimiento sobre el proceso de ruptura de la microestructura bajo la acción de un campo magnético y un esfuerzo de cizalla.

5.2 Líneas de trabajo futuras

Por último se mencionan a continuación nuevas e interesantes líneas de investigación que se abren a raíz del trabajo realizado:

- Caracterización por medio de ultrasonidos de nuevos fluidos variando la naturaleza del solvente, la viscosidad y las partículas (materiales, tamaños o formas diferentes o incluso partículas funcionalizadas).
- Estudio de la intensidad de campo como factor relevante en la microestructura, introduciendo variaciones en la generación de los campos, ya sea mediante el uso de intensidades de campo mayores o ya sea mediante campos pulsados con miras a generar estructuras muy simétricas y ordenadas.
- Realización de un análisis espectral de los parámetros acústicos, así como el estudio a partir de ellos de la dispersión y aparición de resonancias buscando “band gaps”- regiones de frecuencia donde no se produce propagación acústica por efectos de simetría- .
- Desarrollo de nuevos modelos teóricos para la velocidad de propagación y para la atenuación en función de la intensidad de campo magnético aplicado.
- Simulación de propagación de ondas ultrasónicas en este tipo de fluidos usando programas numéricos.

- Desarrollo de nuevos transductores piezoeléctricos con capas de adaptación "variables" basadas en este tipo de materiales.
- Uso de las técnicas ultrasónicas como técnicas complementarias de los estudios reológicos para caracterizar las estructuras formadas.
- Estudio comparativo magnético-acústico sobre los procesos de histéresis, con objeto de obtener una relación entre la falta de recuperación mecánica observada en los resultados de esta Tesis con una posible histéresis magnética propia de las partículas ferromagnéticas.
- Continuación del trabajo de caracterización acústico-reológica de diferentes fluidos MR.

Bibliografía

Ahuja, A. S. (1973). "Wave equation and propagation parameters for sound propagation in suspensions." *Journal of Applied Physics* **44**(11): 4863-4868.

Ahuja, A. S. and W. R. Hendee (1978). "Effects of particle shape and orientation on propagation of sound in suspensions." *Journal of the Acoustical Society of America* **63**(4): 1074-1080.

Allegra, J. R. and S. A. Hawley (1972). "Attenuation of Sound in Suspensions and Emulsions: Theory and Experiments." *The Journal of the Acoustical Society of America* **51**(5B): 1545-1564.

Ament, W. S. (1953). "Sound propagation in gross mixtures." *Journal of the Acoustical Society of America* **25**(4): 638-641.

Aygun, H., K. Attenborough, M. Postema, W. Lauriks and C. M. Langton (2009). "Predictions of angle dependent tortuosity and elasticity effects on sound propagation in cancellous bone." *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**(6): 3286-3290.

Baalbaki, W., P. C. Aitcin and G. Ballivy (1992). "On predicting modulus of elasticity in high-strength concrete." *Aci Materials Journal* **89**(5): 517-520.

Bell, R. C., J. O. Karli, A. N. Vavreck, D. T. Zimmerman, G. T. Ngatu and N. M. Wereley (2008). "Magnetorheology of submicron diameter iron microwires dispersed in silicone oil." *Smart Materials and Structures* **17**(1).

Bica, I. (2006). "Advances in magnetorheological suspension: Production and properties." *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* **12**(4): 501-515.

Biot, M. A. (1956a). "Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. 1. Low-frequency range." *Journal of the Acoustical Society of America* **28**(2): 168-178.

Biot, M. A. (1956b). "Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. 2. High-frequency range." *Journal of the Acoustical Society of America* **28**(2): 179-191.

Biot, M. A. (1962). "Generalized theory of acoustic propagation in porous dissipative media." *Journal of the Acoustical Society of America* **34**(9): 1254-&.

Bossis, G., P. Khuzir, S. Lacis and O. Volkova (2003). "Yield behavior of magnetorheological suspensions." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **258**: 456-458.

Bossis, G., S. Lacis, A. Meunier and O. Volkova (2002). "Magnetorheological fluids." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **252**(1-3): 224-228.

Bossis, G., E. Lemaire, O. Volkova and H. Clercx (1997). "Yield stress in magnetorheological and electrorheological fluids: A comparison between microscopic and macroscopic structural models." *Journal of Rheology* **41**(3): 687-704.

Bramantya, M. A., M. Motozawa and T. Sawada (2010). "Ultrasonic propagation velocity in magnetic and magnetorheological fluids due to an external magnetic field." *Journal of Physics-Condensed Matter* **22**(324102): 5.

Bramantya, M. A., M. Motozawa, H. Takuma, M. Faiz and T. Sawada (2009). "Experimental analysis of clustering structures in magnetic and MR fluids using ultrasound " *Journal of Physics: Conference Series* ,11th Conference on Electrorheological Fluids and Magnetorheological Suspensions **149**(012040): 4.

Bramantya, M. A. and T. Sawada (2011a). "The influence of magnetic field swept rate on the ultrasonic propagation velocity of magnetorheological fluids." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **323**(10): 1330-1333.

Bramantya, M. A., H. Takuma, J. Kuroiwa and T. Sawada (2011b). "Ultrasonic investigation of the effect of volume fraction on the clustering structures of magneto-rheological fluids." *Materials Science Forum* **670**: 198-206.

Carlson, J. D. and J. L. Sproston (2000). "Controllable Fluids in 2000-Status of ER and MR Fluid Technology." *Actuator 2000-7th Int. Conf on New Actuators* 126-130.

Claracq, J., J. Sarrazin and J.-P. Montfort (2004). "Viscoelastic properties of magnetorheological fluids." *Rheologica Acta* **43**(1): 38-49.

D'Arrigo, G. and A. Paparelli (1988). "Sound propagation in water--ethanol mixtures at low temperatures. I. Ultrasonic velocity." *The Journal of Chemical Physics* **88**(1): 405-415.

de Vicente, J., D. J. Klingenberg and R. Hidalgo-Alvarez (2011). "Magnetorheological fluids: a review." *Soft Matter* **7**(8): 3701-3710.

Del Grosso, V. A. and C. W. Mader (1972). "Speed of Sound in Pure Water." *The Journal of the Acoustical Society of America* **52**(5B): 1442-1446.

Domínguez-García, P., S. Melle, O. G. Calderón and M. A. Rubio (2005). "Doublet dynamics of magnetizable particles under frequency modulated rotating fields." *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* **270-271**(0): 270-276.

Donado, F., J. L. Carrillo and M. E. Mendoza (2002). "Sound propagation in magneto-rheological suspensions." *Journal of Physics-Condensed Matter* **14**(9): 2153-2157.

Donado, F. F., M. E. M. E. Mendoza and J. L. Carrillo (2001). "Dynamic elastic properties of magneto-rheological slurries." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* **295**: 81-84.

Dyke, S. J., B. F. Spencer, M. K. Sain and J. D. Carlson (1996). "Modeling and control of magnetorheological dampers for seismic response reduction." *Smart Materials & Structures* **5**(5): 565-575.

Epstein, P. S. and R. R. Carhart (1953). "The absorption of sound in suspensions and emulsions.1. Water fog in air." *Journal of the Acoustical Society of America* **25**(3): 553-565.

Evans, J. M. and K. Attenborough (1997). "Coupled phase theory for sound propagation in emulsions." *The Journal of the Acoustical Society of America* **102**(1): 278-282.

Fermigier, M. and A. P. Gast (1992). "Structure evolution in a paramagnetic latex suspension." *Journal of Colloid and Interface Science* **154**(2): 522-539.

Furst, E. M. (2000). "Optical trapping and scattering studies of field-induced micromechanics, interactions and dynamics in a colloidal suspension." Stanford University

Furst, E. M. and A. P. Gast (2000). "Dynamics and lateral interactions of dipolar chains." *Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics* **62**(5 B): 6916-6925.

Ginder, J. M., L. C. Davis and L. D. Elie (1996). "Rheology of magnetorheological fluids: Models and measurements." *International Journal of Modern Physics B* **10**(23-24): 3293-3303.

González Hernández, M. (2002). "Aplicación de la micromecánica a la caracterización ultrasónica de compuestos de cemento." UPM

Guerrero-Sanchez, C., T. Lara-Ceniceros, E. Jimenez-Regalado, M. Rasa and U. S. Schubert (2007). "Magnetorheological fluids based on ionic liquids." *Advanced Materials* **19**(13): 1740-1747.

Haire, T. J. and C. M. Langton (1999). "Biot theory: a review of its application to ultrasound propagation through cancellous bone." *Bone* **24**(4): 291-295.

Halsey, T. C. and W. Toor (1990). "Structure of electrorheological fluids." *Physical Review Letters* **65**(22): 2820-2823.

Harker, A. H. and J. A. G. Temple (1988). "Velocity and attenuation of ultrasound in suspensions of particles in fluids." *Journal of Physics D-Applied Physics* **21**(11): 1576-1588.

Herr, H. and A. Wilkenfeld (2003). "User-adaptive control of a magnetorheological prosthetic knee." *Industrial Robot-an International Journal* **30**(1): 42-55.

Hill, R. (1952). "The Elastic Behaviour of a Crystalline Aggregate." *Proceedings of the Physical Society. Section A* **65**(5): 349.

Hill, R. (1963). "Elastic properties of reinforced solids: Some theoretical principles." *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* **11**(5): 357-372.

Hughes, E. R., T. G. Leighton, P. R. White and G. W. Petley (2007). "Investigation of an anisotropic tortuosity in a Biot model of ultrasonic propagation in cancellous bone." *Journal of the Acoustical Society of America* **121**(1): 568-574.

Jeong, H. and D. K. Hsu (1996). "Quantitative estimation of material properties of porous ceramics by means of composite micromechanics and ultrasonic velocity." *NDT & E International* **29**(2): 95-101.

Jha, S. and V. K. Jain (2004). "Design and development of the magnetorheological abrasive flow finishing (MRAFF) process." *International Journal of Machine Tools & Manufacture* **44**(10): 1019-1029.

Johnson, D. L. (2000). "Biot slow wave in a magnetorheological slurry?" *Physical Review Letters* **84**(2): 396.

Johnson, D. L. and T. J. Plona (1982). "Acoustic slow waves and the consolidation transition." *Journal of the Acoustical Society of America* **72**(2): 556-565.

Klingenberg, D. J. (2001). "Magnetorheology: Applications and challenges." *Aiche Journal* **47**(2): 246-249.

Klingenberg, D. J. and C. F. Zukoski (1990). "Studies on the steady-shear behavior of electrorheological suspensions." *Langmuir* **6**(1): 15-24.

Kordonski, W. and D. Golini (2002). "Multiple application of magnetorheological effect in high precision finishing." *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* **13**(7-8): 401-404.

Kytömaa, H. K. (1995). "Theory of sound propagation in suspensions: a guide to particle size and concentration characterization." *Powder Technology* **82**(1): 115-121.

Lamb, H. (1994). *Hydrodynamics*. Dover, New York, Cambridge University Press.

Lim, S. T., M. S. Cho, I. B. Jang and H. J. Choi (2004). "Magnetorheological characterization of carbonyl iron based suspension stabilized by fumed silica." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **282**(1-3): 170-173.

Liu, J., G. A. Flores and R. Sheng (2001). "In-vitro investigation of blood embolization in cancer treatment using magnetorheological fluids." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **225**(1-2): 209-217.

López-López, M. T. (2005). "Estudio de suspensiones magnetorreológicas en medios no acusoso." Universidad de Granada

López-López, M. T., A. Gómez-Ramírez, J. D. G. Durán and F. González-Caballero (2008). "Preparation and characterization of iron-based magnetorheological fluids stabilized by addition of organoclay particles." *Langmuir* **24**(14): 7076-7084.

López-López, M. T., P. Kuzhir and G. Bossis (2009). "Magnetorheology of fiber suspensions. I. Experimental." *Journal of Rheology* **53**(1): 115-126.

Lopez-Lopez, M. T., G. Vertelov, G. Bossis, P. Kuzhir and J. D. G. Duran (2007). "New magnetorheological fluids based on magnetic fibers." *Journal of Materials Chemistry* **17**(36): 3839-3844.

LordCo, "Do it yourself."(www.lord.com).

Ly, H. V., K. Ito, H. T. Banks, M. R. Jolly and F. Reitich (2001). "Dynamic simulation of the temporal response of microstructure formation in magnetorheological fluids." *International Journal of Modern Physics B* **15**(6-7): 894-903.

Martin, J. E. and R. A. Anderson (1996). "Chain model of electrorheology." *Journal of Chemical Physics* **104**(12): 4814-4827.

Martin, J. E., K. M. Hill and C. P. Tigges (1999). "Magnetic-field-induced optical transmittance in colloidal suspensions." *Physical Review E* **59**(5): 5676-5692.

Martin, J. E., J. Odinek and T. C. Halsey (1992). "Evolution of structure in a quiescent electrorheological fluid." *Physical Review Letters* **69**(10): 1524-1527.

Melle, S. (2002). "Study of the dynamics in magnetorheological suspensions subject to external fields by means of optical techniques." UNED y Stanford University

Metha, P. K. and P. M. J. Monteiro (1993). *Concrete: Structure, properties and materials*. Englewood Cliffs, New Jersey., Prentice-Hall Inc.

Mohebi, M., N. Jamasbi and J. Liu (1996). "Simulation of the formation of nonequilibrium structures in magnetorheological fluids subject to an external magnetic field." *Physical Review E* **54**(5): 5407-5413.

Mori, T. and K. Tanaka (1973). "Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions." *Acta Metallurgica* **21**(5): 571-574.

Motozawa, M., Y. Matsumoto, T. Sawada, K. Katagiri and H. Nishiyama (2005). Ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids and MR fluid under magnetic field. 6th World Conference on Experimental Heat transfer, FLuid Mechanics and Thermodynamics, Japan.

Mulholland, A. J., R. L. O'Leary, N. Ramadas, A. Parr, A. Troge, R. A. Pethrick and G. Hayward (2007). "A theoretical analysis of a piezoelectric ultrasound device with an active matching layer." *Ultrasonics* **47**(1-4): 102-110.

Nahmad-Molinari, Y., C. A. Arancibia-Bulnes and J. C. Ruiz-Suarez (1999). "Sound in a magnetorheological slurry." *Physical Review Letters* **82**(4): 727-730.

Ngatu, G. T., N. M. Wereley, J. O. Karli and R. C. Bell (2008). "Dimorphic magnetorheological fluids: Exploiting partial substitution of microspheres by nanowires." *Smart Materials and Structures* **17**(4).

Olabi, A. G. and A. Grunwald (2007). "Design and application of magneto-rheological fluid." *Materials and Design* **28**(10): 2658-2664.

Pakula, M., F. Padilla, P. Laugier and M. Kaczmarek (2008). "Application of Biot's theory to ultrasonic characterization of human cancellous bones: Determination of structural, material, and mechanical properties." *Journal of the Acoustical Society of America* **123**(4): 2415-2423.

Park, J. H., B. D. Chin and O. O. Park (2001). "Rheological properties and stabilization of magnetorheological fluids in a water-in-oil emulsion." *Journal of Colloid and Interface Science* **240**(1): 349-354.

Phulle, P. P. and J. M. Ginder (1999). "Synthesis and properties of novel magnetorheological fluids having improved stability and redispersibility." *International Journal of Modern Physics B* **13**(14-16): 2019-2027.

Povey, M. J. W. (1997). *Ultrasonic technique for fluid characterization*. London, Academic Publisher.

Pradeep, P. and P. Phul  e (2001). "Magnetorheological (MR) fluids: Principles and applications." *Smart Materials Bulletin* **2001**(2): 7-10.

Promislow, J. H. E. and A. P. Gast (1996). "Magnetorheological fluid structure in a pulsed magnetic field." *Langmuir* **12**(17): 4095-4102.

Rabinow, J. (1948). "The magnetic fluid clutch." *AIEE Trans* **67**: 1308-1315.

Resa, P., L. Elvira and F. Montero de Espinosa (2004). "Concentration control in alcoholic fermentation processes from ultrasonic velocity measurements." *Food Research International* **37**(6): 587-594.

Reuss, A. (1929). "Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle " *Journal of Applied Mathematics and Mechanics* **9**: 49-58.

Sachse, W. and Y.-H. Pao (1978). "On the determination of phase and group velocities of dispersive waves in solids." *Journal of Applied Physics* **49**(8): 4320-4327.

Sayers, C. M. (1980). "On the propagation of ultrasound in highly concentrated mixtures and suspensions." *Journal of Physics D: Applied Physics* **13**(2): 179.

Schulitz, F. T., Y. C. Lu and H. N. G. Wadley (1998). "Ultrasonic propagation in metal powder viscous liquid suspensions." *Journal of the Acoustical Society of America* **103**(3): 1361-1369.

Schwartz, L. and T. J. Plona (1984). "Ultrasonic propagation in close-packed disordered suspensions." *Journal of Applied Physics* **55**(11): 3971-3977.

Selfridge, A. R. (1985). "Approximate material properties in isotropic materials." *Ieee Transactions on Sonics and Ultrasonics* **32**(3): 381-394.

Sharma, M. D. and M. L. Gogna (1991). "Wave propagation in anisotropic liquid-saturated porous solids." *The Journal of the Acoustical Society of America* **90**(2): 1068-1073.

Strelitzki, R. and J. A. Evans (1996). "On the measurement of the velocity of ultrasound in the os calcis using short pulses." *European Journal of Ultrasound* **4**(3): 205-213.

Tebbutt, J. S. and R. E. Challis (1996). "Ultrasonic wave propagation in colloidal suspensions and emulsions: A comparison of four models." *Ultrasonics* **34**(2-5): 363-368.

Toor, W. R. (1993). "Structure formation in electrorheological fluids." *Journal of Colloid and Interface Science* **156**(2): 335-349.

Trendler, A. M. and H. Böse (2005). "Influence of particle size on the rheological properties of magnetorheological suspensions." *International Journal of Modern Physics B* **19**(7-9): 1416-1422.

Twersky, V. (1962). "On Scattering of Waves by Random Distributions. I. Free-Space Scatterer Formalism." *Journal of Mathematical Physics* **3**(4): 700-715.

Ulicny, J. C., K. S. Snavely, M. A. Golden and D. J. Klingenberg (2010). "Enhancing magnetorheology with nonmagnetizable particles." *Applied Physics Letters* **96**(23).

Urick, R. J. (1947). "A sound velocity method for determining the compressibility of finely divided substances." *Journal of Applied Physics* **18**(11): 983-987.

Urick, R. J. (1948). "The absorption of sound in suspensions of irregular particles." *Journal of the Acoustical Society of America* **20**(3): 283-289.

Urick, R. J. and W. S. Ament (1949). "The Propagation of Sound in Composite Media." *The Journal of the Acoustical Society of America* **21**(2): 115-119.

Vand, V. (1948a). "Viscosity of Solutions and Suspensions. I. Theory." *The Journal of Physical and Colloid Chemistry* **52**(2): 277-299.

Vand, V. (1948b). "Viscosity of Solutions and Suspensions. II. Experimental Determination of the Viscosity-Concentration Function of Spherical Suspensions." *The Journal of Physical and Colloid Chemistry* **52**(2): 300-314.

Vand, V. (1948c). "Viscosity of Solutions and Suspensions. III. Theoretical Interpretation of Viscosity of Sucrose Solutions." *The Journal of Physical and Colloid Chemistry* **52**(2): 314-321.

Vékás, L. (2008). "Ferrofluids and Magnetorheological fluids." *Advances in Science and Technology* **54**: 127-136.

Voigt, W. (1928). "Lehrbuch der Kristallphysik." Leipzig: 962-964.

Waterman, P. C. and R. Truell (1961). "Multiple Scattering of Waves." *Journal of Mathematical Physics* **2**(4): 512-537.

Wear, K. A. (2000). "Measurements of phase velocity and group velocity in human calcaneus." *Ultrasound in Medicine and Biology* **26**(4): 641-646.

Wear, K. A., A. Laib, A. P. Stuber and J. C. Reynolds (2005). "Comparison of measurements of phase velocity in human calcaneus to Biot theory." *Journal of the Acoustical Society of America* **117**(5): 3319-3324.

Weijia , W. J., D. W. Zheng and K. N. Tu (1999). "Chain/column evolution and corresponding electrorheological effect." *Journal of Applied Physics* **85**(1): 530-533.

Wereley, N. M., A. Chaudhuri, J. H. Yoo, S. John, S. Kotha, A. Suggs, R. Radhakrishnan, B. J. Love and T. S. Sudarshan (2006). "Bidisperse magnetorheological fluids using Fe particles at nanometer and micron scale." *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* **17**(5): 393-401.

Wicker, K. and D. Guicking (2002). "Electrorheological Fluids as an Electrically Controllable Acoustic Medium: II. Medium Properties and Description by the Biot Theory." *Acta Acustica united with Acustica* **88**(6): 896-903.

Williams, J. L. (1992). "Ultrasonic wave propagation in cancellous and cortical bone- Prediction of some experimental results by Biot theory." *Journal of the Acoustical Society of America* **91**(2): 1106-1112.

Yalcintas, M. and H. Dai (1999). "Magnetorheological and electrorheological materials in adaptive structures and their performance comparison." *Smart Materials and Structures* **8**(5): 560-573.

Yang, C. C. (1997). "Approximate elastic moduli of lightweight aggregate." *Cement and Concrete Research* **27**(7): 1021-1030.

Yang, C. C. and R. Huang (1996). "Double inclusion model for approximate elastic moduli of concrete material." *Cement and Concrete Research* **26**(1): 83-91.

Ye, L., J. Liu, P. Sheng and D. A. Weitz (1993). "Sound propagation in suspensions of solid spheres." *Physical Review E* **48**(4): 2805-2815.